THÈSE

PRÉSENTÉE

A L'UNIVERSITÉ SCIENTIFIQUE ET MÉDICALE DE GRENOBLE

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE 3E CYCLE

SPÉCIALITÉ : PHYSIQUE DU SOLIDE

par

ANNICK PAILLERY

RÉSISTIVITÉ ET ÉNERGIE DE FORMATION DES PAIRES DE FRENKEL DANS LE NICKEL PUR ET ALLIÉ

Soutenue le 22 Février 1972, devant la commission d'examen

MM. J. CHEEKE — PRÉSIDENT

G. KUHN
E. BONJOUR
Mme C. MINIER — EXAMINATEURS

Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41544313_0034

THÈSE

PRÉSENTÉE

A L'UNIVERSITÉ SCIENTIFIQUE ET MÉDICALE DE GRENOBLE

POUR OBTENIR

LE TITRE DE DOCTEUR DE 3E CYCLE

SPÉCIALITÉ : PHYSIQUE DU SOLIDE

par

ANNICK PAILLERY

RÉSISTIVITÉ ET ÉNERGIE DE FORMATION DES PAIRES DE FRENKEL DANS LE NICKEL PUR ET ALLIÉ

Soutenue le 22 Février 1972, devant la commission d'examen

MM.	J. CHEEKE	PRÉSIDENT
	G. KUHN	EXAMINATEURS
	E. BONJOUR	
Mme	C. MINIER	

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

UNIVERSITE SCIENTIFIQUE
ET MEDICALE DE GRENOBLE

LISTE DES PROFESSEURS

Président : Monsieur Michel SOUTIF
Vice-Président : Monsieur Gabriel CAU

PROFESSEURS TITULAIRES

MM.	ANGLES D'AURIAC Paul	Mécanique des fluides
	ARNAUD Georges	Clinique des maladies infectieuses
	ARNAUD Paul	Chimie
	AUBERT Guy	Physique
	AYANT Yves	Physique approfondie
Mme	BARBIER Marie-Jeanne	Electrochimie
MM.	BARBIER Jean-Claude	Physique expérimentale
	BARBIER Reynold	Géologie appliquée
	BARJON Robert	Physique nucléaire
	BARNOUD Fernand	Biosynthèse de la cellulose
	BARRA Jean-René	Statistiques
	BARRIE Joseph	Clinique chirurgicale
	BENOIT Jean	Radioélectricité
	BERNARD Alain	Mathématiques pures
	BESSON Jean	Electrochimie
	BEZES Henri	Chirurgie générale
	BLAMBERT Maurice	Mathématiques pures
	BOLLIET Louis	Informatique (IUT B)
	BONNET Jean-Louis	Clinique ophtalmologique
	BONNET-EYMARD Joseph	Pathologie médicale
	BONNIER Etienne	Electrochimie Electrométallurgie
	BOUCHERLE André	Chimie et Toxicologie
	BOUCHEZ Robert	Physique nucléaire
	BRAVARD Yves	Géographie
	BRISSONNEAU Pierre	Physique du Solide
	BUYLE-BODIN Maurice	Electronique
	CABANAC Jean	Pathologie chirurgicale
	CABANEL Guy	Clinique rhumathologique et hydrologie
	CALAS François	Anatomie
	CARRAZ Gilbert	Biologie animale et pharmacodynamie
	CAU Gabriel	Médecine légale et toxicologie
	CAUQUIS Georges	Chimie organique
	CHABAUTY Claude	Mathématiques pures
	CHARACHON Robert	Oto-Rhino-Laryngologie
	CHATEAU Robert	Thérapeutique
	CHENE Marcel	Chimie papetière
	COEUR André	Pharmacie chimique
	CONTAMIN Robert	Clinique gynécologique
	COUDERC Pierre	Anatomie Pathologique
	CRAYA Antoine	Mécanique
Mme	DEBELMAS Anne-Marie	Matière médicale
MM.	DEBELMAS Jacques	Géologie générale
	DEGRANGE Charles	Zoologie
	DESSAUX Georges	Physiologie animale
	DODU Jacques	Mécanique appliquée
	DOLIQUE Jean-Michel	Physique des plasmas
	DREYFUS Bernard	Thermodynamique
	DUCROS Pierre	Cristallographie
	DUGOIS Pierre	Clinique de Dermatologie et Syphiligraphie
	FAU René	Clinique neuro-psychiatrique

MM.	FELICI Noël	Electrostatique
	GAGNAIRE Didier	Chimie physique
	GALLISSOT François	Mathématiques pures
	GALVANI Octave	Mathématiques pures
	GASTINEL Noël	Analyse numérique
	GERBER Robert	Mathématiques pures
	GIRAUD Pierre	Géologie
	KLEIN Joseph	Mathématiques pures
Mme	KOFLER Lucie	Botanique et Physiologie végétale
MM.	KOSZUL Jean-Louis	Mathématiques pures
	KRAVTCHENKO Julien	Mécanique
	KUNTZMANN Jean	Mathématiques Appliquées
	LACAZE Albert	Thermodynamique
	LACHARME Jean	Biologie végétale
	LATREILLE René	Chirurgie générale
	LATURAZE Jean	Biochimie pharmaceutique
	LAURENT Pierre	Mathématiques Appliquées
	LEDRU Jean	Clinique médicale B
	LLIBOUTRY Louis	Géophysique
	LOUP Jean	Géographie
Mle	LUTZ Elisabeth	Mathématiques pures
MM.	MALGRANGE Bernard	Mathématiques pures
	MALINAS Yves	Clinique obstétricale
	MARTIN-NOEL Pierre	Séméiologie médicale
	MASSEPORT Jean	Géographie
	MAZARE Yves	Clinique médicale A
	MICHEL Robert	Minéralogie et Pétrographie
	MOURIQUAND Claude	Histologie
	MOUSSA André	Chimie nucléaire
	NEEL Louis	Physique du Solide
	OZENDA Paul	Botanique
	PAUTHENET René	Electrotechnique
	PAYAN Jean-Jacques	Mathématiques pures
	PEBAY-PEROULA Jean-Claude	Physique
	PERRET René	Servomécanismes
	PILLET Emile	Physique industrielle
	RASSAT André	Chimie systématique
	RENARD Michel	Thermodynamique
	REULOS René	Physique industrielle
	RINALDI Renaud	Physique
	ROGET Jean	Clinique de pédiatrie et de puériculture
	SANTON Lucien	Mécanique
	SEIGNEURIN Raymond	Microbiologie et Hygiène
	SENGEL Philippe	Zoologie
	SILBERT Robert	Mécanique des fluides
	SOUTIF Michel	Physique générale
	TANCHE Maurice	Physiologie
	TRAYNARD Philippe	Chimie générale
	VAILLAND François	Zoologie
	VALENTIN Jacques	Physique nucléaire
	VAUQUOIS Bernard	Calcul électronique
Mme	VERAIN Alice	Pharmacie galénique
M.	VERAIN André	Physique
Mme	VEYRET Germaine	Géographie
MM.	VEYRET Paul	Géographie
	VIGNAIS Pierre	Biochimie médicale
	YOCCOZ Jean	Physique nucléaire théorique

PROFESSEURS ASSOCIES

MM. BOUDOURIS Georges	Radioélectricité
BULLEMER Bernhard	Physique
CHEEKE John	Thermodynamique
HANO JUN-ICHI	Mathématiques pures
STEPHENS Michaël	Mathématiques Appliquées

PROFESSEURS SANS CHAIRE

MM. BEAUDOING André	Pédiatrie
Mme BERTRANDIAS Françoise	Mathématiques pures
MM. BERTRANDIAS Jean-Paul	Mathématiques appliquées
BIAREZ Jean-Pierre	Mécanique
BONNETAIN Lucien	Chimie minérale
Mme BONNIER Jane	Chimie générale
MM. CARLIER Georges	Biologie végétale
COHEN Joseph	Electrotechnique
COUMES André	Radioélectricité
DEPASSEL Roger	Mécanique des fluides
DEPORTES Charles	Chimie minérale
DESRE Pierre	Métallurgie
GAUTHIER Yves	Sciences biologiques
GEINDRE Michel	Electoradiologie
GERMAIN Jean-Pierre	Mécanique
GIDON Paul	Géologie et minéralogie
GLENAT René	Chimie organique
HACQUES Gérard	Calcul numérique
JANIN Bernard	Géographie
Mme KAHANE Josette	Physique
MM. MULLER Jean-Michel	Thérapeutique
PERRIAUX Jean-Jacques	Géologie et Minéralogie
POULOUJADOFF Michel	Electrotechnique
REBECQ Jacques	Biologie (CUS)
REVOL Michel	Urologie
REYMOND Jean-Charles	Chirurgie générale
ROBERT André	Chimie papetière
SARRAZIN Roger	Anatomie et chirurgie
SARROT-REYNAULD Jean	Géologie
SIBILLE Robert	Construction Mécanique
SIROT Louis	Chirurgie générale
Mme SOUTIF Jeanne	Physique générale

MAITRES DE CONFERENCES ET MAITRES DE CONFERENCES AGREGES

Mle AGNIUS-DELORD Claudine	Physique pharmaceutique
ALARY Josette	Chimie analytique
MM. AMBLARD Pierre	Dermatologie
AMBROISE-THOMAS Pierre	Parasitologie
ARMAND Yves	Chimie
BEGUIN Claude	Chimie organique
BELORIZKY Elie	Physique
BENZAKEN Claude	Mathématiques appliquées
BILLET Jean	Géographie
BLIMAN Samuel	Electronique (EIE)
BLOCH Daniel	Electrotechnique

Mme BOUCHE Liane	Mathématiques (CUS)
MM. BOUCHET Yves	Anatomie
BOUSSARD Jean-Claude	Mathématiques appliquées
BOUVARD Maurice	Mécanique des fluides
BRIERE Georges	Physique expérimentale
BRODEAU François	Mathématiques (IUT B)
BRUGEL Lucien	Energétique
BUISSON Roger	Physique
BUTEL Jean	Orthopédie
CHAMBLAZ Edmond	Biochimie médicale
CHAMPETIER Jean	Anatomie et organogènèse
CHIAVERINA Jean	Biologie appliquée (EFP)
CHIBON Pierre	Biologie animale
COHEN-ADDAD Jean-Pierre	Spectrométrie physique
COLOMB Maurice	Biochimie médicale
CONTE René	Physique
CROUZET Guy	Radiologie
DURAND Francis	Métallurgie
DUSSAUD René	Mathématiques (CUS)
Mme ETERADOSSI Jacqueline	Physiologie
MM. FAURE Jacques	Médecine légale
GAVEND Michel	Pharmacologie
GENSAC Pierre	Botanique
GIDON Maurice	Géologie
GRIFFITHS Michaël	Mathématiques appliquées
GROULADE Joseph	Biochimie médicale
HOLLARD Daniel	Hématologie
HUGONOT Robert	Hygiène et Médecine préventive
IDELMAN Simon	Physiologie animale
IVANES Marcel	Electricité
JALBERT Pierre	Histologie
JOLY Jean-René	Mathématiques pures
JOUBERT Jean-Claude	Physique du Solide
JULLIEN Pierre	Mathématiques pures
KAHANE André	Physique générale
KUHN Gérard	Physique
Mme LAJZEROWICZ Jeannine	Physique
MM. LAJZEROWICZ Joseph	Physique
LANCIA Roland	Physique atomique
LE JUNTER Noël	Electronique
LEROY Philippe	Mathématiques
LOISEAUX Jean-Marie	Physique nucléaire
LONGEQUEUE Jean-Pierre	Physique nucléaire
LUU DUC Duong	Chimie organique
MACHE Régis	Physiologie végétale
MAGNIN Robert	Hygiène et mécecine préventive
MARECHAL Jean	Mécanique
MARTIN-BOUYER Michel	Chimie (CUS)
MAYNARD Roger	Physique du Solide
MICHOULIER Jean	Physique (I.U.T. "A")
MICOUD Max	Maladies infectieuses
MOREAU René	Hydraulique (INP)
NEGRE Robert	Mécanique
PARAMELLE Bernard	Pneumologie
PECCOUD François	Analyse (IUT B)

MM.	PEFFEN René	Métallurgie
	PELMONT Jean	Physiologie animale
	PERRET Jean	Neurologie
	PERRIN Louis	Pathologie expérimentale
	PFISTER Jean-Claude	Physique du Solide
	PHELIP Xavier	Rhumatologie
Mle	PIERY Yvette	Biologie animale
MM.	RACHAIL Michel	Médecine interne
	RACINET Claude	Gynécologie et obstétrique
	RICHARD Lucien	Botanique
Mme	RINAUDO Marguerite	Chimie macromoléculaire
MM.	ROMIER Guy	Mathématiques (IUT B)
	ROUGEMONT (DE) Jacques	Neuro-Chirurgie
	SHAN Jean-Claude	Chimie générale
	STIEGLITZ Paul	Anesthésiologie
	STOEBNER Pierre	Anatomie pathologique
	VAN CUTSEM Bernard	Mathématiques appliquées
	VEILLON Gérard	Mathématiques appliquées (INP)
	VIALON Pierre	Géologie
	VOOG Robert	Médecine interne
	VROUSSOS Constantin	Radiologie
	ZADWORNY François	Electronique

MAITRES DE CONFERENCES ASSOCIES

MM.	GOLDSCHMIDT Hubert	Mathématiques
	SIDNEY STUARD	Mathématiques pures
	YACOUD Mahmoud	Médecine légale

CHARGES DE FONCTIONS DE MAITRES DE CONFERENCES

Mme	BERIEL Hélène	Physiologie
M.	LACOUME Jean-Louis	Electrotechnique
Mme	RENAUDET Jacqueline	Microbiologie

J'exprime ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur L. NEEL, Prix Nobel de Physique, Membre de l'Institut, Délégué du Haut Commissaire auprès du CEN-G où a été effectué ce travail.

Je remercie Monsieur D. DAUTREPPE, Chef du Département de Recherche Fondamentale du CEN-G qui a bien voulu m'accueillir dans ses laboratoires.

Je remercie Monsieur J. PAULEVE, Chef de la Section de Physique du Solide, qui m'a accordé toutes facilités pour poursuivre cette étude.

Monsieur le Professeur J. CHEEKE, Monsieur G. KUHN, Maître de Conférences, Monsieur E. BONJOUR ont bien voulu faire partie du Jury. Je les en remercie.

Je remercie tout spécialement Madame C. MINIER ainsi que Monsieur J.M. COTIGNOLA, Collaborateur étranger du Centr Atomique de Bariloche (Argentine) qui m'ont proposé ce travail. Leurs conseils et leur compétence m'ont été des plus précieux.

A Monsieur E. BONJOUR, ingénieur au Service des Basses Températures, qui a collaboré très efficacement à cette étude, j'exprime mes plus sincères remerciements.

Je remercie également Monsieur R. LAGNIER du Service des Basses Températures qui, par ses conseils et son aide technique a facilité la réalisation de ce travail.

Je remercie le personnel du Secrétariat de la Section de Physique du Solide et du Service des Accélérateurs.

Enfin que tous les amis et plus particulièremen Messieurs G. BAUDRAND et J. SANDALINAS trouvent ici l'expression de ma reconnaissance pour leur aide efficace et sympathique.

PLAN DE LA THESE

I - INTRODUCTION

I - 1 Rappel des résultats sur le nickel pur

I-1-1- Résistivité électrique

I-1-2- Traînage magnétique

I-1-3- Frottement interne

I-1-4- Modèle proposé

I - 2 Rappel des résultats sur le nickel dopé

I-2-1- Résistivité électrique

I-2-2- Discussion

II - TECHNIQUES EXPERIMENTALES

II - 1 Préparation des échantillons

II-1-1- Purification du matériau

II-1-2- Mise en forme et traitements thermiques

II - 2 Montage des échantillons

II - 3 Dispositif d'irradiation à basse température

II-3-1- Faisceau électronique

II-3-2- Circuits cryogéniques

II - 4 Dispositif d'étude après irradiation

II-4-1- Remontées en température

II-4-2- Mesures d'énergie libérée

II-4-3- Mesures de résistivité

III - RESULTATS EXPERIMENTAUX

III - 1 Nickel pur

III-1-1 Résistivité

III-1-2 Energie libérée

III - 2 Nickel impur

III-2-1- nickel-silicium

III-2-2- nickel-argent

III-2-3- nickel-béryllium

IV - DISCUSSION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

IV - 1 Nickel pur

IV - 2 Nickel allié

IV-2-1- premier mécanisme

IV-2-2- deuxième mécanisme

IV-2-3- troisième mécanisme

IV-2-4- quatrième mécanisme

V - CONCLUSION

CHAPITRE I

INTRODUCTION

I-1 Rappel des résultats sur le nickel pur:

Dans le laboratoire de Physique du Solide, trois techniques principales ont été utilisées pour l'étude des défauts ponctuels (lacunes et interstitiels) dans le nickel : la résistivité électrique, le traînage magnétique et le frottement interne. Elles ont permis aux chercheurs du laboratoire de proposer un modèle de revenu des défauts ponctuels créés par irradiation électronique dans le nickel.

I-1-1 Résistivité électrique

J.L. ODDOU (Réf. 1) a montré qu'après irradiation électronique, le revenu de la résistivité s'effectue en trois stades : I,II, et III. Le stade I représente 80% du revenu et est subdivisé en cinq sous-stades: I_A,I_B,I_C,I_D et I_E dont les maxima sont situés respectivement à T_A<20°K, 28°K,42°K, 54°K et 62°K. Les expériences réalisées suggèrent que l'interstitiel libre de nickel migre à longue distance au cours du sous stade I_E (car la cinétique de guérison est d'ordre supérieur à 1)

I-1-2 Traînage magnétique

La résistivité électrique donne des renseignements globaux et permet d'observer tous les stades de revenu tandis que les deux techniques : traînage et frottement interne sont sélectives et ne permettent d'observer que certains défauts. En effet l'apparition d'une bande de traînage magnétique ou d'un pic de frottement interne est conditionnée par la possibilité de réorientation d'un défaut par rapport à l'aimantation (traînage) ou à la contrainte appliquée (frottement interne). En traînage magnétique P. PERETTO (Ref. 2) observe des bandes de traînage à 31°K,41°K,et 62°K associées aux sous-stades I_B, I_C et I_E de résistivité.

I-1-3 Frottement interne

En frottement interne G. de KEATING HART (Ref. 3) obtient des pics à 34°K et 44°K au niveau des sous-stades I_B et I_C de résistivité, et des pics supplémentaires non prévus par les bandes de traînage magnétique. D'autre part à la bande de traînage la plus importante (I_E) ne correspond aucun pic de frottement interne.

I-1-4 Modèle proposé

L'ensemble de ces résultats a permis de proposer le modèle suivant :

- Les sous-stades I_B,I_C sont associés à l'annihilatio de paires de Frenkel proches. Par suite de l'existence des bandes de traînage et des pics de frottement interne, les paires correspondant aux sous-stades I_B et I_C peuvent évoluer d'une structure à une structure équivalente avant de s'annihiler.

- Au niveau de I_D il n'y a pas cette possibilité de réorientation; la recombinaison des interstitiels dans les lacunes est directe; I_D suit l'annihilation d'un ensemble de paires proches en interaction assez faible.

- Le sous-stade I_E est associé à l'annihilation de l'interstitiel libre de nickel migrant à longue distance. L'absence de pic de frottement interne alors qu'il existe une bande de traînage magnétique serait dûe au fait que l'interstitiel serait doué d'une forte anisotropie magnétique mais ne créerait pas d'anisotropie élastique importante.

I-2 Rappel des résultats sur le nickel dopé

Le nickel dopé a été étudié par deux méthodes expérimentales : résistivité et traînage magnétique.

I-2-1 Résistivité électrique

J.L. ODDOU (Ref.1) montre que l'accroissement de résistivité observé sur des échantillons de nickel faiblement allié est linéaire en fonction de la dose d'électrons incidents. D'autre part, pour une même dose d'électrons incidents, l'accroissement de résistivité est toujours plus important dans l'échantillon de nickel dopé que dans celui de nickel pur. Le tableau suivant résume les valeurs de p obtenues par J.L. ODDOU (Ref.1) ; p étant le rapport de l'accroissement initial de résistivité dans le nickel dopé à celui du nickel pur :

$$p = \frac{\Delta \rho_o \text{ impur}}{\Delta \rho_o \text{ pur}}$$

concentrations \ impuretés	Si	Fe	Co	Cu	Sb
0, 10^{-4} at%	1	1	1	1	1
1000, 10^{-4} at%	> 1,2	≈ 1,1	≈ 1,1	≈ 1,1	1,7
5000, 10^{-4} at%	> 3	≈ 1,5	≈ 1,5	≈ 1,5	
10000, 10^{-4} at%		2,2			

Des expériences semblables ont été réalisées sur du fer dopé étudié par résistivité électrique par C. MINIER (Ref 4 Les résultats obtenus sont très différents de ceux enregistrés sur le nickel, notamment l'effet : $\frac{\Delta\rho_{o\,impur}}{\Delta\rho_{o\,pur}} \longrightarrow 1$ ne se produit pas. Cela semble indiquer que c'est un effet propre au nickel.

Dans le nickel dopé les courbes de restauration $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_o} = f(T)$ ont la même allure générale que celles du nickel pur. Le stade I est subdivisé de manière identique mais la présence d'impuretés apporte une diminution de son amplitude relative et de légères modifications à ses sous-stades. Des sous-stades supplémentaires sont mis en évidence, notés II'_A et II''_A.

L'impureté diminue donc, par sa présence, l'annihilation d'une grande partie des interstitiels du sous-stade I_D et également, mais de manière moindre, des sous-stades I_B et I_C tandis que l'annihilation des interstitiels libres (I_E) est modifiée.

Dans le tableau suivant sont rassemblés les résultats obtenus pour différentes impuretés lors du revenu de la résistivité au stade I.

Dose = 1,2. 10^{18} e^-/cm^2 de 3 MeV				
stades \ $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_o}$ %	Ni pur	Ni+5000.10^{-4} at%Fe	Ni+5000.10^{-4} at%Cu	Ni+5000.10^{-4} at%Co
I_B	1,5	1	1,5	1,5
I_C	16 (78,5)	14 (64)	15,5 (60)	15 (66)
I_D+I_E	59	49	43	49,5

Dose = 1,5. 10^{18} e^-/cm^2 de 3 MeV			
stades \ $\frac{\Delta\rho}{\Delta\rho_o}$ %	Ni pur	Ni+5000.10^{-4} at%Si	Ni+3000.10^{-4} at%Sb
I_B	2	0,5	1,5
I_C	15 (76)	10,5 (66,5)	14 (62,5)
$I_D + I_E$	58,5	55,5	47

I-2-2 Discussion

J.L. ODDOU (Ref.1) propose deux hypothèses possibles de l'accroissement initial plus important dans le nickel impur que dans le nickel pur, selon que l'on accepte ou non l'hypothèse suivante .

Une même dose de particules incidentes crée une quantité sensiblement équivalente de paires de Frenkel dans le nickel pur comme dans le nickel impur .

Si nous acceptons cette hypothèse, nous devons admettre que la contribution à la résistivité d'une paire de Frenkel varie avec la pureté du métal. Cette interprétation met en cause la règle de Matthiessen, qui prévoit l'additivité des contributions à la résistivité résiduelle des divers centre diffuseurs. Ainsi pour un alliage à la température T, la règle prévoit que :

$$\rho_m(T) = \rho(o) + \rho_h(T)$$

où $\rho(o)$ est la résistivité résiduelle de l'alliage et $\rho_h(T)$ la résistivité du métal pur à la température T. Pour un métal contenant deux impuretés A et B, on devrait avoir l'additivité des résistivités résiduelles:

$$\rho_{A+B}(o) = \rho_A(o) + \rho_B(o)$$

Mais Campbell, Fert et Pomeroy (Ref.6) ont mis en évidence qu'aucune de ces règles n'était valable, même de façon approchée, dans les alliages de fer. Ils justifient ce phénomène dans un métal ferromagnétique à l'aide d'un modèle à deux courants en parallèle transportés par des électrons de spin positif ($\rho\uparrow$) et des électrons de spin négatif ($\rho\downarrow$). Il existe un terme ($\rho\uparrow\downarrow$) dû à la diffusion électron-électron. Ce terme est proportionnel à T^2. (Ref.7)

Pour un alliage contenant deux impuretés en même concentration, la résistivité résiduelle est donnée par

$$\frac{1}{\rho_{A,B}} = \frac{1}{\rho_A\uparrow + \rho_A\downarrow} + \frac{1}{\rho_B\uparrow + \rho_B\downarrow}$$

CAMPBELL et al ont montré que l'écart à la règle de Matthiessen à une température T :

$$\Delta\rho(T) = \rho(T) - [\rho(o) + \rho_h(T)]$$

était considérable. Dans le domaine de température 4°K-70°K nous avons $\Delta\rho(T)$ proportionnel à T^2. A plus haute température cet accroissement est moins rapide. La déviation est très importante pour des impuretés métalliques de transition et est très faible pour des impuretés d'aluminium et de silicium.

impuretés	concentration Wt %	$\Delta\rho$ à 293°K $\mu\Omega$.cm
Mn	1,88	6,4
Mn	1,45	4,9
Os	6,50	4,6
Os	3,33	3,3
Al	3,15	0,3
Si	2,91	0,1

l'écart à la règle est très grand si $\frac{\rho_{\uparrow}(o)}{\rho_{\downarrow}(o)} = 1$. Or dans le cas du silicium et de l'aluminium $\rho^{\uparrow}_{[o]} \simeq \rho^{\downarrow}_{[o]}$.

D'autre part CAMPBELL et al (Ref. 6) ont montré que pour un alliage contenant deux impuretés, la résistivité résiduelle de l'ensemble est supérieure à la somme des résistivités résiduelles séparées :

$$\rho_{A+B}(o) > \rho_A(o) + \rho_B(o)$$

Dans le cas du nickel allié, lors de l'irradiation, des défauts, lacunes et interstitiels, sont créés et l'on peut supposer que le comportement de ces centres diffuseurs pour la résistivité est analogue à celui des impuretés.(Ref. 8 et 9)

- Si nous rejetons l'hypothèse précitée, l'effet observé($\frac{\Delta\rho_{o\ impur}}{\Delta\rho_{\ pur}} > 1$) serait dû à une modification apportée par la présence d'impuretés dans le processus de création des défauts (Ref.10). J.L. ODDOU (Ref.1) a rappelé plusieurs modes d'action susceptibles de se produire.

D'abord un effet statique dans lequel une paire instable peut être stabilisée par la présence à proximité d'une impureté. Mais les calculs de Johnson (Ref11) ont montré qu'il existe peu de sites instables autour d'une lacune et d'autre part qu'ils sont très proches de cette lacune (distance maximum $a\sqrt{2}$). La stabilisation ne peut avoir lieu que si l'impureté est située à une distance moindre de la lacune. Ce phénomène qui entraînerait une augmentation de l'accroissement initial ne joue donc qu'un rôle mineur.

Ensuite un effet dynamique :

- Un interstitiel rencontrant une impureté sur son parcours peut être bloqué par elle ; le stade I_E serait ainsi diminué au profit des stades II mais l'accroissement initial de résistivité ne serait pas affecté au premier ordre.

- Un phénomène d'auto-annihilation en anneau. L'atome éjecté prend la place de l'atome voisin et ainsi de suite jusqu'à former une boucle fermée. Chaque atome a pris la place du premier atome éjecté, si bien qu'aucun défaut n'est finalement créé. Si une impureté se trouve à proximité de l'anneau, le processus d'annihilation peut être entravé et un interstitiel peut être créé à quelques distances atomiques de la lacune; l'accroissement initial de résistivité serait augmenté ainsi que les sous-stades I_C et I_D.

- Un autre phénomène peut se produire : la focalisation qui s'effectue le long d'une ligne atomique dense sans transfert de matière. Un premier atome choqué a suffisamment d'énergie pour se déplacer et à son tour choquer un deuxième atome et lui transmettre de l'énergie suffisante pour qu'il se déplace, mais ce premier atome choqué revient ensuite à sa position initiale. Le deuxième atome frappe un troisième atome e revient à sa position initiale et ainsi de suite. Si un atome d'impureté est placé sur le parcours d'un tel focusson, il est déplacé et bloque le focusson ; un défaut est ainsi créé. Le nombre ν_D d'atomes d'impureté déplacés lors d'une collision par focusson a été calculé pour du cuivre contenant quelques 10^{-4} at% d'impuretés par K. KAMADA et al (Ref.12). ν_D est proportionnel à la concentration N_I d'atomesd'impuretés. Si on admet que pour chaque atome d'impureté déplacé correspond la création d'une paire de Frenkel, l'accroissement de défauts créés reste linéaire en fonction de N_I, tant que cette concentration est inférieure au nombre de collisions par focusson.

J.L.ODDOU (Ref.1) ne pouvait choisir entre les deux hypothèses qu'il proposait. Comme les phénomènes d'auto-annihilation restent faibles dans le nickel et que d'autre part les courbes de restauration de la résistivité dans le stade I sont peu modifiées en présence d'impuretés, une plus grande importance a cependant été donnée à l'hypothèse qui prévoit une variation de la résistivité des défauts dûe à la présence d'impuretés plutôt qu'à celle de l'augmentation de la production des défauts.

D'où l'idée d'associer à l'étude des défauts par la résistivité des mesures d'énergie libérée ; en effet, en supposant que la recombinaison des paires de Frenkel libère la même énergie dans le nickel pur et dans le nickel impur, on pourrait connaître approximativement la concentration de défauts créés dans les deux cas et par suite évaluer la résistivité d'une paire de Frenkel dans chaque échantillon. D'autre part,en

couplant ces deux techniques expérimentales, les résultats obtenus et comparés se rapportent bien à un même type de défaut, ayant subi les mêmes traitements, lors de la formation et lors de la migration. Un autre avantage de ces expériences couplées est que le rapport $\frac{\Delta E}{\Delta \rho}$ à un même stade de guérison est indépendant de la concentration et permet d'identifier un type de défaut; les premières expériences couplées d'énergie et de résistivité ont été réalisées par H. BLEWITT et al (Ref.13) sur du cuivre dopé au Bore 10. D'autres expériences d'énergie et de résistivité ont été réalisées sur du cuivre, (Ref.18 et 19), de l'aluminium(Ref.20) et du platine (REF.21). Monsieur BONJOUR a fait la synthèse des différentes expériences d'énergie libérée (Ref.22).

Si la règle de Matthiessen est juste, on a vu que cela entraîne une augmentation des défauts créés en présence d'impuretés; par conséquent on s'attend à obtenir une libération d'énergie plus importante dans le nickel dopé que dans le nickel pur.

Si la règle de Matthiessen est fausse, on a le même nombre de paires de Frenkel de créées; dans ce cas on s'attend à obtenir à peu près la même énergie libérée dans les différents échantillons.

L'étude de l'énergie libérée permettra peut-être de choisir entre ces deux hypothèses.

J.L. DOUDU (Ref.1) ayant obtenu un maximum de l'effet $\frac{\Delta\rho_{o\ impur}}{\Delta\rho_{o\ pur}}$ supérieur à 1 dans le cas du nickel dopé au silicium, nous avons choisi cette impureté pour réaliser les premières expériences d'énergie libérée. Des expériences effectuées sur du fer dopé (Ref.4) ont mis en évidence le lien entre la différence d'éfficacité du piègeage des diverses impuretés et leur rayon atomique. Dans le fer les impuretés de petit rayon : silicium et béryllium produisent des pièges profonds pour les

interstitiels tandis que les impuretés de rayon supérieur : nickel, cobalt, platine, antimoine et aluminium conduisent à des énergies de liaison très faibles entre un interstitiel et un atome d'impureté. Le rayon atomique du silicium (1,17Å) étant voisin de celui du nickel (1,245Å) pour les autres impuretés nous avons pris du béryllium (1,125Å) et de l'argent (1,44Å) de rayons atomiques et de masses atomiques très différents de ceux du nickel:

	masse atomique	$\frac{\text{rayon atomique}}{\text{rayon atomique Ni}}$	$\frac{\text{rayon ionique}}{\text{rayon ionique Ni}}$
nickel	58,71	1	1
silicium	28,09	0,940	0,609
argent	107,87	1,158	1,826
béryllium	9,013	0,904	0,638

CHAPITRE II

TECHNIQUES EXPERIMENTALES

II-1 Préparation des échantillons

II-1-1 Purification du matériau

Le matériau de base utilisé est du Nickel en poudre d'une pureté de 99,999% qui est mis en forme par fusion sous hydrogène ; on obtient un barreau de Nickel que l'on purifie par fusion de zone sous atmosphère gazeuse, d'abord sous hydrogène suis sous hélium. A la fin de ce traitement, on obtient du Nickel avec une teneur en impuretés de l'ordre de quelques 10^{-4} at%. Dans une partie de ce barreau de Nickel, on incorpore la concentration voulue d'atomes étrangers et par fusion de zone l'alliage est homogénéisé, sous atmosphère d'hydrogène.

II-1-2 Mise en forme et traitements thermiques

Pour les expériences d'énergie libérée qui donnent des variations proportionnelles à la masse de l'échantillon, on doit utiliser des plaques de 20 x 30 x 0,5mm pour avoir une précision suffisante bien qu'avec une telle épaisseur, la perte d'énergie d'électrons incidents de 2 MeV après traversée de l'échantillon soit déjà de 0,55 MeV.

Pour les mesures de résistivité, on utilise des fils de 0,15 à 0,10 mm de diamètre, obtenus par passage dans des filières en diamant. Un recuit ultérieur pendant 24 heures

à 880°C restaure les propriétés mécaniques de l'échantillon. Divers essais ont été effectués sur du Ni pur et du Ni - Si (40.10^{-4} et 100.10^{-4} at%) afin de voir quelles sont les conditions de recuit qui donnent le meilleur rapport $R = \frac{\rho_{300°K}}{\rho_{20°K}}$

Les résultats obtenus sont les suivants :

	Ni-Si 40.10^{-4} at%	Ni-Si 100.10^{-4} at%	Ni
avant recuit :	35 à 38	35 à 40	32 à 36
après recuit :			
- sous He avec zéolithe pour éliminer l'eau et l'oxygène	27	12	
- sous He avec piège à charbon actif et redescente très lente en température (environ 15 heures)	97	95	241
- sous ultravide (10^{-8} mm)	100 à 131	95	45
- sous vide secondaire (10^{-5} mm) après passage dans un piège à azote liquide pour éliminer le carbone et les vapeurs d'huile, ceci en début de vide secondaire (10^{-3} mm)	200	179	

On peut remarquer que le rapport est plus élevé avec le vide secondaire qu'avec l'ultravide. Cet effet a déjà été observé. Une explication possible est que le vide secondaire, renfermant de l'hydrogène a un rôle purificateur que ne possède pas l'ultravide.

Divers essais de traitement thermique sous vide et sous atmosphère d'hélium, obtenus par chauffage de l'échantillon par effet Joule dans un cryostat à hélium liquide, ont été effectués sur des échantillons de Ni pur.

1) un premier échantillon qui, brut et sans recuit, a un rapport R' $\frac{\rho 300°K}{\rho 4,2°K}$ = 42

a subi plusieurs traitements successifs :

- après un recuit à l'hélium pendant une 1/2 heure à 1000°C sous 1 atmosphère à 10 cm au-dessus du bain d'hélium, on obtient R' = 1100
- ensuite on l'écrouit puis on le recuit sous hélium à 1000°C pendant 10 mn. On constate que l'écrouissage modifie peu R' = 1078
- puis on le recuit sous un vide primaire de 10^{-2}mm ; R' = 940

2) un deuxième échantillon qui brut a un rapport R' = 44
est directement recuit sous vide primaire 10^{-2}mm on obtient : R' = 1097

3) un troisième échantillon recuit 48 heures sous 10^{-8}mm : R' = 197
est ensuite recuit pendant 30mn à 800°C sous hélium (20cm) = 337
puis est recuit pendant 30 mn à 800°C sous hélium (10 cm) = 964
puis est recuit pendant 30 mn à 800°C sous hélium (chambre haute) = 478

Les meilleures conditions de recuit sont donc sous hélium, 10 cm au-dessus du bain. Le rapport obtenu est R' = 1100 ; mais un recuit sous vide primaire donne sensiblement le même rapport.

II-2 Montage des échantillons

Nous devons étudier simultanément le revenu de la résistivité et la libération de l'énergie stockée. Cette étude n'aura de sens que si l'ensemble de mesures (échantillon de résistivité et celui d'énergie) est à la même température et reçoit le même flux de particules incidentes.

La plaque pour la mesure d'énergie est irradiée de façon inhomogène par suite de la perte d'énergie du faisceau évaluée à 0,55 MeV à la traversée de la plaque. Pour pallier à cette dissymétrie le fil de résistivité entoure la plaque et l'effet produit sur ce fil est donc un effet moyen comparable à celui produit dans la plaque (Fig.1)

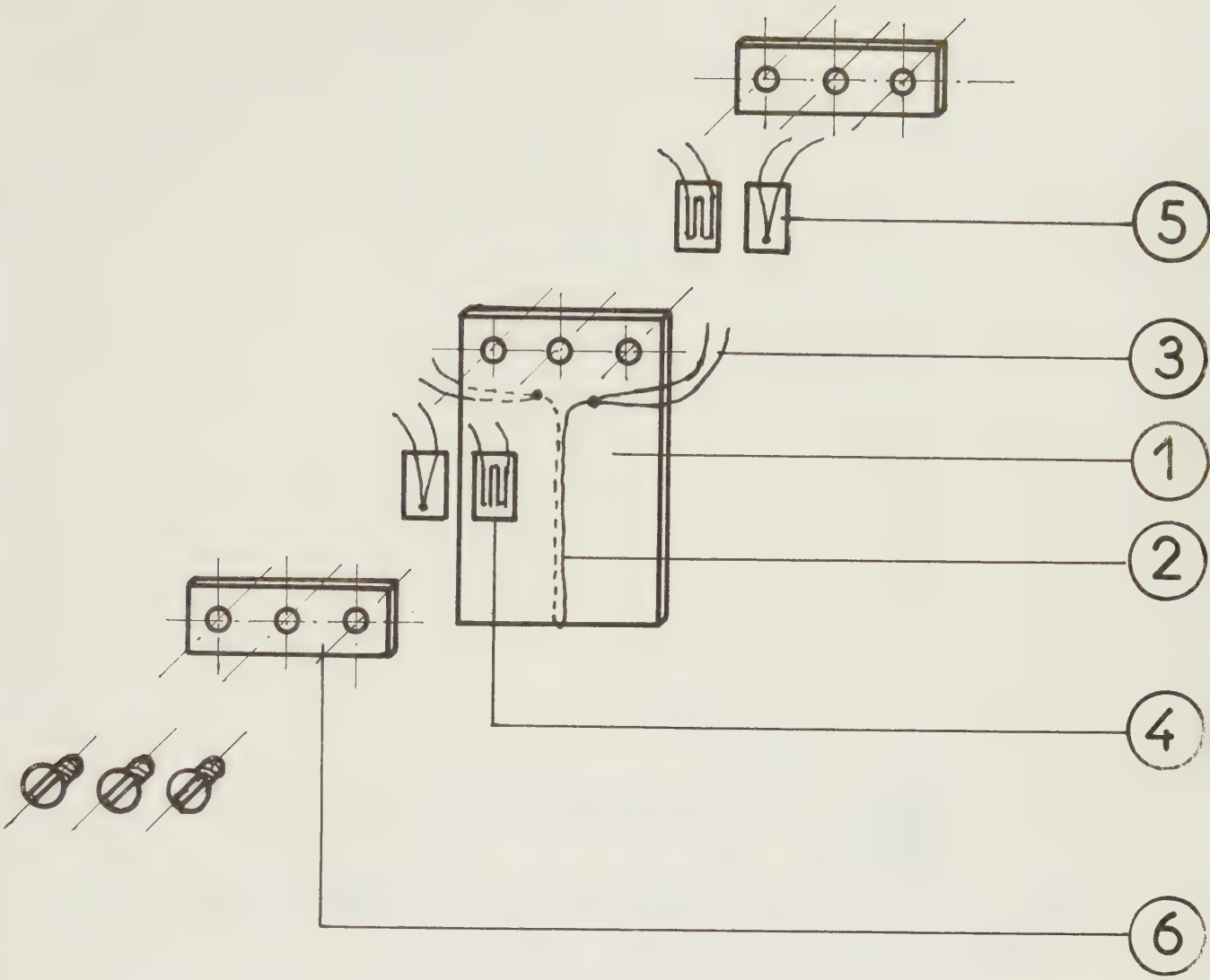
Afin que le fil et la plaque soient rigoureusement à la même température au cours de l'étude du revenu, le fil de résistivité est collé sur la plaque à l'aide de "H-film", excellent conducteur thermique et très bon isolant électrique. Les extrémités du fil sont soudées aux fils de mesures (constantan pour la tension et cuivre pour l'intensité).

Sur la partie supérieure de la plaque et sur chaque face sont disposées deux microrésistances (350,0±0,3% Ω) permettant un traitement thermique de l'ensemble fil-plaque et deux thermocouples en chromel-constantan qui mesurent la température.

II-3 Dispositif d'irradiation à basse température

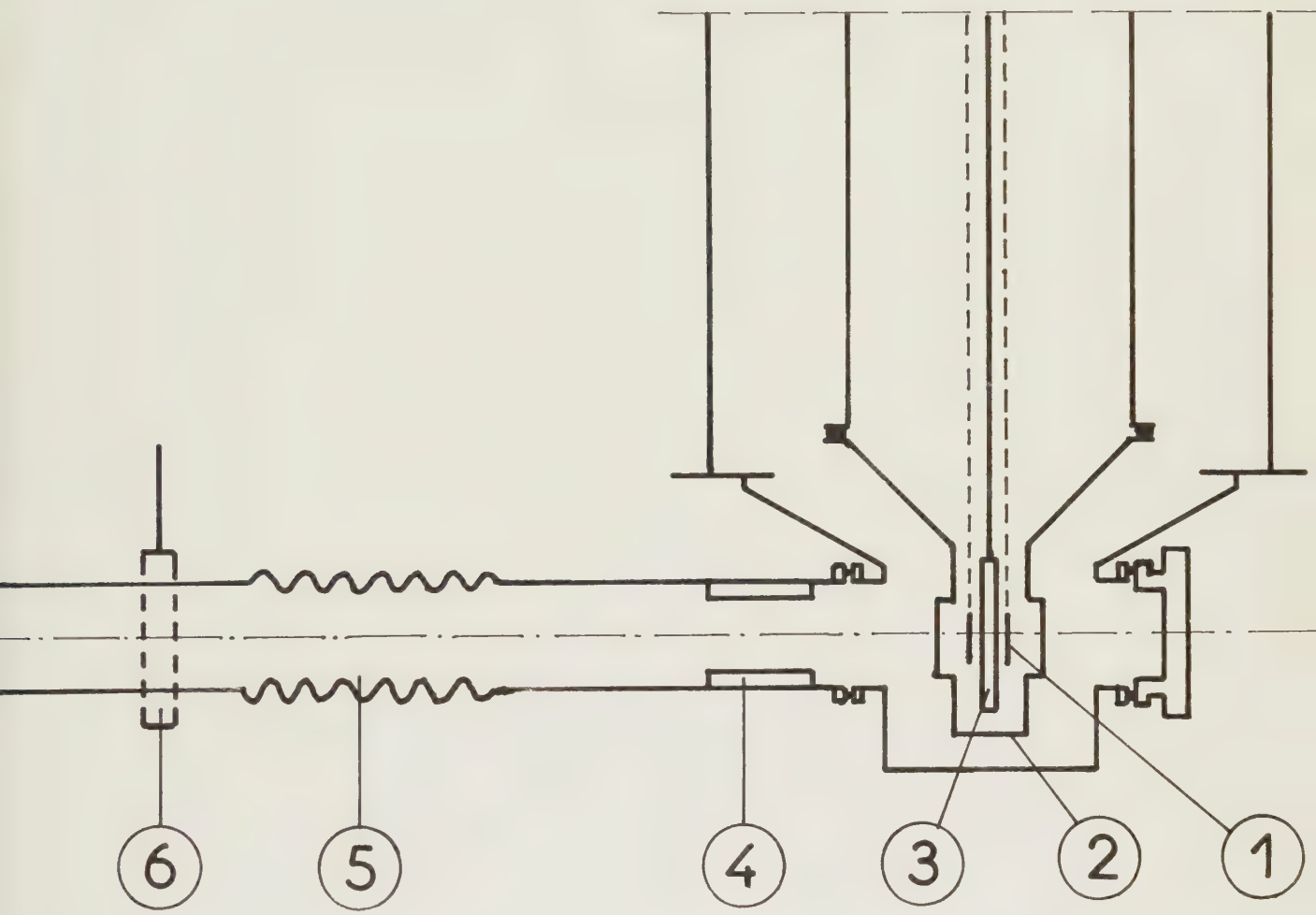
II-3-1 Faisceau électronique

Le faisceau électronique est fourni par un accélérateur Van de Graaff. L'énergie des électrons est de 2 Mev. Il est intéressant de connaître le flux électronique qui traverse effectivement l'échantillon irradié. A la sortie du canon de l'accélérateur se trouve une cible escamotable reliée à un système de mesure de courant ; baissée, elle recueille tout le faisceau et on mesure ainsi le courant total I (Fig.2). Lorsque la cible est relevée le faisceau passe d'abord à travers un



1 - Plaque d'énergie libérée
2 - Fil de résistivité
3 - Fils de mesures de tension et d'intensité
4 - Microrésistance
5 - Thermocouple
6 - Support de l'ensemble de mesures

Fig. 1 - Ensemble de mesures de résistivité et d'énergie libérée.



1 - Ensemble de mesures
2 - Queue du cryostat
3 - Ecran en cuivre
4 - Diaphragme
5 - Soufflet de raccordement à l'accélérateur
6 - Cible escamotable

Fig. 2 - Mesure de flux électronique

diaphragme qui recueille un courant I_1, et enfin frappe l'ensemble fil-plaque (1 sur la fig. 3). On a placé derrière cet ensemble un écran épais (5mm) (2 sur la fig.3) en cuivre et dans lequel est découpée une petite plaque (20x20x5 mm) de mêmes dimensions que la partie de l'échantillon d'énergie soumise à irradiation ; elle est isolée du reste de l'écran par de la céramique. Comme l'échantillon étudié est très mince (0,5mm), en admettant qu'il diffuse très peu, on peut considérer que tous les électrons le traversent et sont arrêtés par la plaque de cuivre (20x20x5 mm), laquelle nous donne donc un courant I_2(A sur la fig.3). Enfin le reste de l'écran en cuivre est relié à la queue du cryostat et recueille les électrons qui ont franchi tous les obstacles précédents = c'est le courantI_3 (B sur la fig.3).

On a donc le bilan : $I = I_1 + I_2 + I_3$

Par exemple lors d'une expérience, on a obtenu :

I = 25 µA courant cible

I_1 = 0,5 µA courant diaphragme

I_2 = 15 µA courant échantillon

I_3 = 9,5 µA courant queue

On irradie en moyenne pendant 30 heures avec un courant I_2 de (15 ± 5) µA. L'échantillon reçoit alors un flux de $(27 \pm 9).10^{-3}$ A-Mn ce qui correspond à un flux de $(2,5 \pm 0,3).10^{18} e^-/cm^2$. Pendant toute l'irradiation on enregistre l'évolution de la résistivité de l'échantillon.

II-3-2 Circuits cryogéniques

L'ensemble de mesures est dans un cryostat en inox muni de fenêtres en titane de 50 µ d'épaisseur et connecté au canon de l'accélérateur. L'hydrogène liquide (20°K) nous est fourni par un cryogénérateur qui comporte trois circuits (fig.4

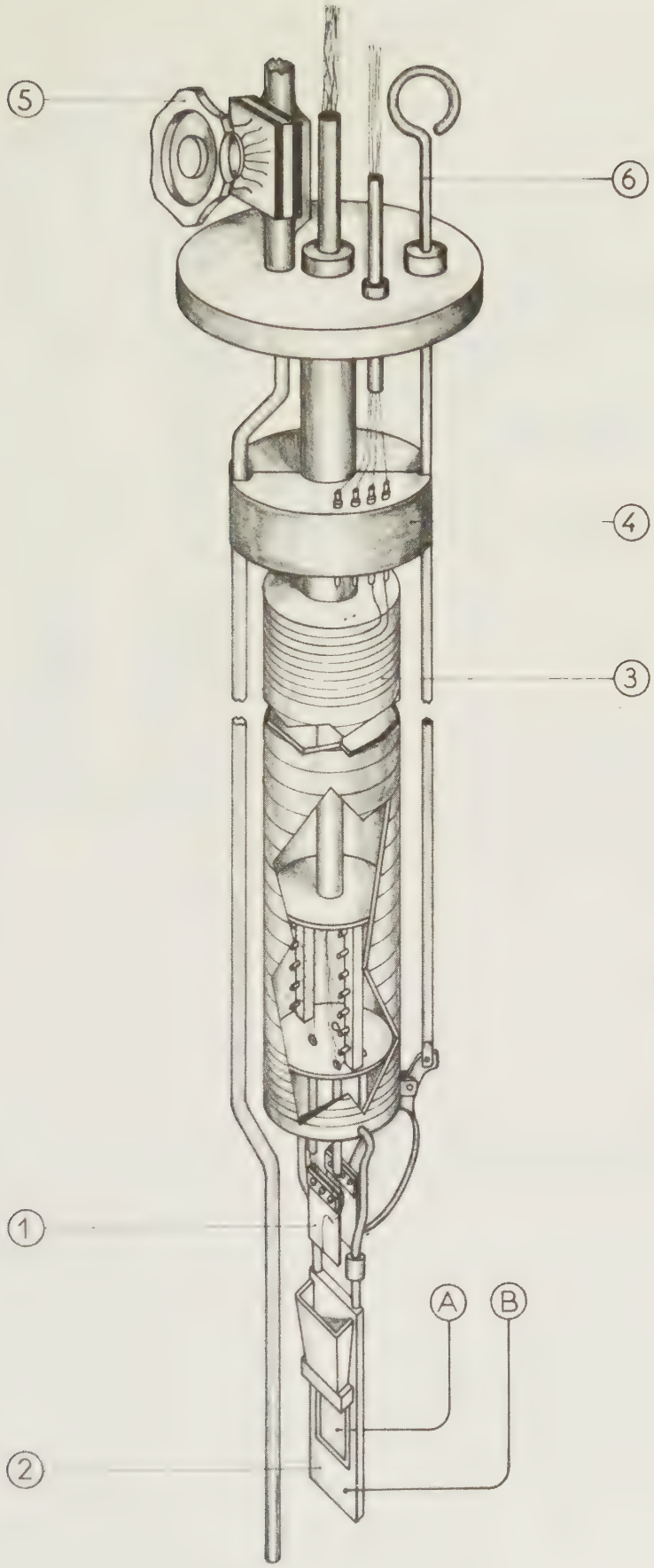


Fig. 3 - Dispositif pour les mesures "in situ" de résistivité et d'énergie libérée

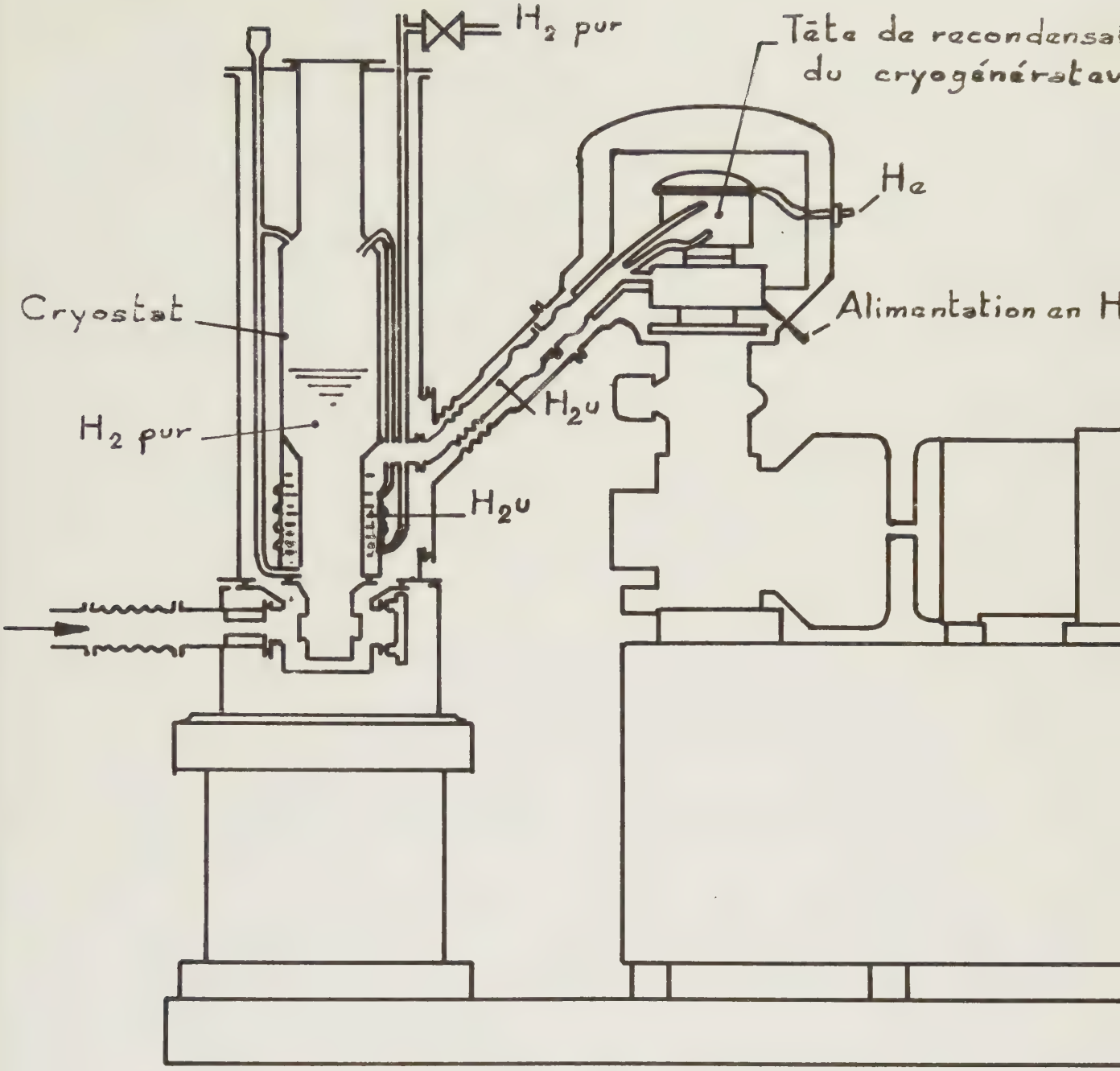


Fig. 4 - Circuits cryogéniques

1) D'abord un circuit d'hélium mis sous une pressio de 27 à 29 bars dans la tête du cryogénérateur ; par un système de compressions et de détentes, cet hélium gazeux est refroidi à la température de 20°K.

2) Entre la tête froide du cryogénérateur et le cryostat circule de l'hydrogène industriel (noté H_2u sur la fig. 4) qui sert de fluide d'échange. Refroidi à 20°K au contact de l'hélium du cryogénérateur, cet hydrogène, liquéfié au bout de quelques heures, circule dans un échangeur en cuivre qui entoure la cuve du cryostat, ainsi constamment maintenue à 20°K.

3) Enfin à l'intérieur du cryostat lui-même on introduit avant irradiation environ 1 litre d'hydrogène pur (5.10^{-4} at%) préalablement prérefroidi dans un échangeur et qui se liquéfie en 1 heure.
Deux positions sont possibles pour les échantillons dans le cryostat.

- une position pour l'irradiation dans laquelle les échantillons sont descendus au fond de la cuve, dans l'hydrogène pur liquide, face aux fenêtres en titane, c'est-à-dire face au faisceau électronique.

- une position pour le traitement thermique dans laquelle les échantillons sont remontés à l'intérieur du cryostat, dans un écran thermique (3 sur la fig. 3) ; ceci après irradiation.

II-4 Dispositif d'étude après irradiation

II-4-1 Remontées en température

Après irradiation on procède aux remontées linéaires en température et on étudie la variation de la résistivité et de l'énergie au cours de l'annihilation des défauts créés. Comme nous le verrons plus loin, l'étude de l'énergie

libérée nécessite la présence de deux ensembles fil-plaque. Ces deux ensembles sont mis de part et d'autre de la plaque en cuivre de 5mm dont nous avons parlé plus haut (fig.3). Cette plaque sert d'écran de telle sorte qu'un seul ensemble fil-plaque est irradié. Cet ensemble est appelé A (actif) et l'autre non irradié est appelé T (témoin). Pendant les remontées linéaires les deux ensembles A et T sont suspendus en position haute à l'intérieur du cryostat maintenu sous vide secondaire (10^{-5} à 10^{-6} mm Hg); pour avoir ce vide on chasse l'hydrogène de la cuve en y envoyant de l'hélium gazeux puis on pompe celui-ci. (vanne de siphonnage = 5 sur la fig. 3)

Les remontées linéaires sont réalisées grâce au dispositif mis au point par M. BONJOUR et al du Service des Basses Températures (Ref. 24) dont voici le principe : (Fig.5)

1) les deux ensembles de mesure A et T sont échauffés de façon indépendante directement par des micro-résistances R_A (sur A) et R_T (sur T) incorporées sur chaque plaque d'où une inertie thermique faible. Au moyen d'une chaîne électronique très sensible, la puissance appliquée en R_T est régulée pour faire suivre à l'ensemble témoin un programme rigoureusement linéaire. A cet effet la tension délivrée par le thermocouple absolu θa sur T est comparée à celle fournie par un potentiomètre $P_{\theta a}$ qui reproduit les variations du pouvoir thermo-électrique du thermocouple chromel-contantan. Les expériences ont été faites avec des vitesses de montée de 1,5°K/mn et de 2,5°K/mn.

2) Une deuxième chaîne électronique très sensible permet en régulant la puissance appliquée en R_A d'annuler en permanence l'écart de température Δθ entre les ensembles A et T mesuré par le thermocouple différentiel. A et T suivent donc le même programme d'échauffement, quels que soient les effets thermiques qui surviennent et on mesure la différence d'énergies fournies à chacun d'eux. Si à une certaine température il y a

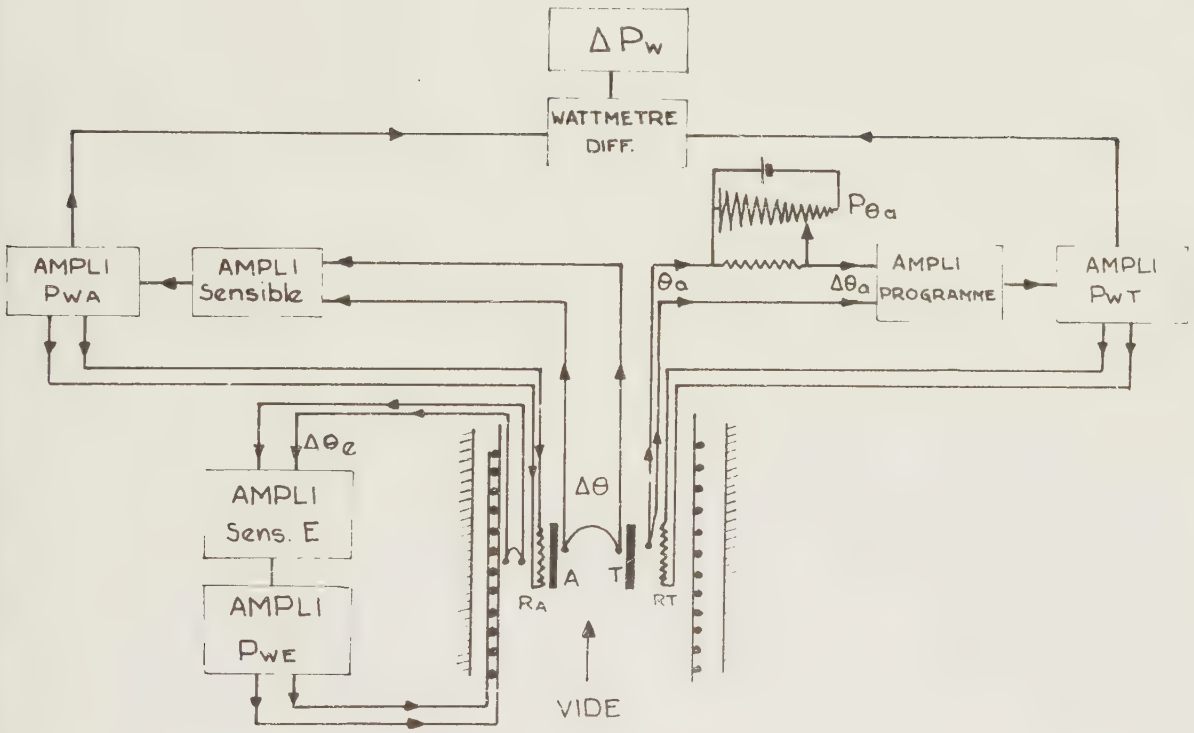


Fig. 5 - Schéma de principe

libération d'énergie due à la guérison d'un défaut dans l'échantillon irradié A, on enregistrera une baisse d'énergie à lui fournir pour le maintenir à la même température que le témoin T.

3) Le régime d'échange entre échantillons et environnement est quasi-adiabatique. En effet, une troisième chaîne électronique de puissance asservit en permanence la température de l'écran thermique, qui entoure A et T, sur celle de l'ensemble A.

Des expériences ont été faites pour vérifier la linéarité des montées en température et leur reproductibilité l'erreur maximale sur la température absolue est de 3°K.

II-4-2 Mesures d'énergie libérée

Soit P_1 la puissance appliquée en R_A (échantillon irradié), P_2 celle appliquée en R_T (échantillon témoin), lors de la remontée en température, de 20°K à 300°K, et ΔP leur différence qui représente l'apport ou le retrait de puissance nécessaire pour annuler l'écart de température $\Delta\theta$ entre A et T.

$$\Delta P = P_1 - P_2$$

P_1, P_2, et ΔP transposées linéairement en tension au moyen d'un millwattmètre différentiel, sont enregistrées sur un MECI en fonction du temps et donc de la température, puisqu'on opère en réchauffement linéaire.

En supposant que les plaques d'énergie de A et T sont rigoureusement identiques (même masse m et même chaleur spécifique C) et que l'adiabaticité est parfaite, le bilan thermique à la température θ s'écrit :

$$m\left[C(\theta) + \frac{dE}{d\theta}\right]\frac{d\theta}{dt} = P_1 \qquad \text{actif}$$

$$m\ C(\theta)\frac{d\theta}{dt} = P_2 \qquad \text{témoin}$$

$\frac{dE}{dt}$ représente la variation de l'énergie libérée au cours du recuit. Mais en réalité on doit tenir compte d'une dissymétrie de masse ($m_1 \neq m_2$ entre A et T) et d'une dissymétrie de pertes ($P_1 \neq P_2$).
Le bilan thermique s'écrit alors :

$$m_1\left[C(\theta) + \frac{dE}{d\theta}\right]\frac{d\theta}{dt} + P_1 = P_1 \qquad \text{actif}$$

$$m_2\ C(\theta)\frac{d\theta}{dt} + P_2 = P_2 \qquad \text{témoin}$$

La dissymétrie des pertes a pour effet que la température moyenne des deux échantillons peut être légèrement différente. Ainsi la ligne de base peut présenter une légère dérive.
Comme les effets thermiques sont prolongés sur une plage de température importante (20°K à 300°K), on exécute un deuxième recuit. Le bilan thermique de ce deuxième recuit s'écrit :

$$m_1\ C(\theta)\frac{d\theta'}{dt} + P'_1 = P'_1 \qquad \text{actif}$$

$$m_2\ C(\theta)\frac{d\theta'}{dt} + P'_2 = P'_2 \qquad \text{témoin}$$

on a toujours $\frac{d\theta'}{dt} = \frac{d\theta}{dt}$ à cause de l'indépendance entre les asservissements des deux variables θ et T.

Lors du premier recuit on enregistre :

$$\Delta P = P_1 - P_2 = \left| m_1\left[C(\theta) + \frac{dE}{d\theta}\right]\frac{d\theta}{dt} + P_1 \right| - \left| m_2\ C(\theta)\frac{d\theta}{dt} + P_2 \right|$$

et lors du deuxième recuit

$$\Delta P' = P'_1 - P'_2 = \left| m_1 C(\theta) \frac{d\theta}{dt} + P'_1 \right| - \left| m_2 C(\theta) \frac{d\theta}{dt} + P'_2 \right|$$

$$\text{d'où } \Delta P - \Delta P' = m_1 \frac{dE}{dt} + (p_1 - p'_1) + (p'_2 - p_2)$$

Si on admet que ces pertes sont très faibles, alors pour un même échantillon, les deux recuits consécutifs se faisant dans les mêmes conditions expérimentales, on a reproductibilité des pertes et dans ce cas

$$p'_1 = p_1$$

et

$$p'_2 = p_2$$

Or à partir d'expériences on a pu mesurer ces pertes:

$$\text{à } 90°K \text{ on a } \frac{(p_1 - p'_1) + (p'_2 - p_2)}{\Delta P - \Delta P'} = 4\%$$

$$\text{à } 160°K \text{ on a } \frac{(p_1 - p'_1) + (p'_2 - p_2)}{\Delta P - \Delta P'} = 50\%$$

Nous voyons donc que jusqu'à 70°K, on peut écrire:

$$\Delta P - \Delta P' = m_1 \frac{dE}{dt}$$

on a ainsi une mesure directe de l'énergie libérée lors de la recombinaison des défauts, mais on ne peut rien dire de l'énergie totale libérée vue l'importance considérable des pertes par rayonnement.

II-4-3 Mesures de résistivité

Le fil est parcouru par un courant maintenu constant grâce à une régulation de courant ($I = 10 \pm 10^{-4}$ mA). Deux méthodes ont été utilisées pour ces mesures de résistivité

1) D'abord une méthode d'opposition classique, à l'aide de ponts potentiométriques Cambridge ou de ponts Honeywell permettant d'atteindre le dixième de microvolt. Les tensions amplifiées par des LEEDS étaient enregistrées sur un MECI.

2) Puis on a mesuré directement les différentes grandeurs, tensions et intensités, par un voltmètre numérique (qui donne aussi le dixième de microvolt) associé à une imprimante.

On enregistre les variations de résistivité seulement entre 30°K et 100°K car au-dessous de 30°K, le programme d'échauffement n'est pas linéaire et au-delà de 90°K, l'effet dû aux défauts ponctuels est masqué par la grande variation de la résistivité due aux phonons. Avec ces différentes mesures, on peut tracer la courbe de la résistivité de l'échantillon irradié contenant des défauts ponctuels en fonction de la température lors de la première montée et après annihilation de ces défauts, lors de la seconde montée (fig.6). La différence entre ces deux courbes nous permet d'éliminer la variation de la résistivité due à la température et donc de ne garder que celle due à la guérison des défauts ponctuels créés par irradiation (fig.7). Ceci est correct si on suppose que la dépendance de la résistivité avec la température est la même que l'échantillon soit irradié ou non. Une étude a été faite à ce sujet sur un échantillon de Ni-Be (1000.10^{-4} at%) non irradié soumis à deux recuits successifs.

à 70°K et à 150°K $\frac{\Delta R}{R} = 0,6\%$

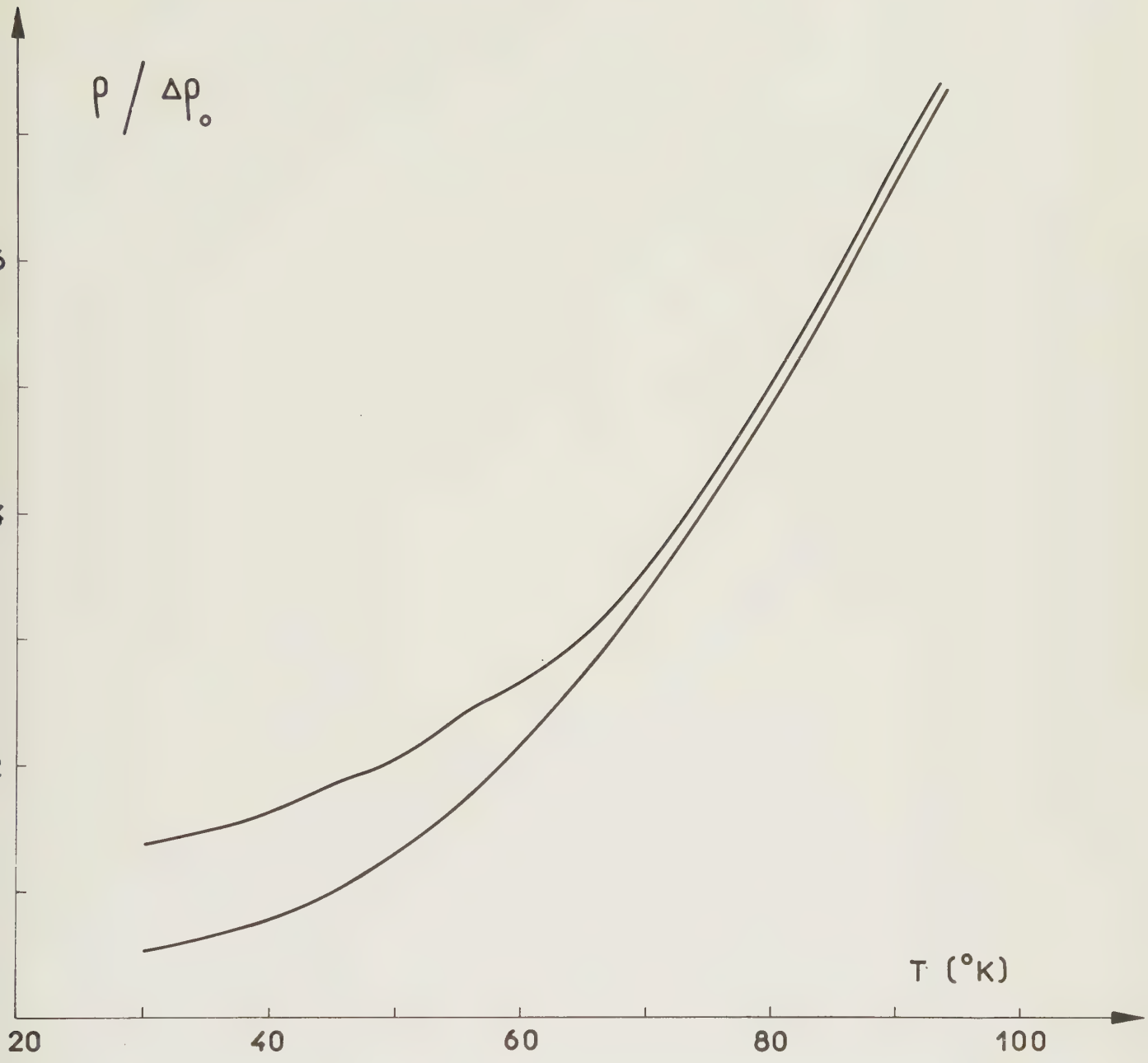


Fig. 6 - Variation de la résistivité d'un échantillon de nickel pur irradié à 20°K et du même échantillon recuit à 300°K au cours d'une élévation linéaire en température

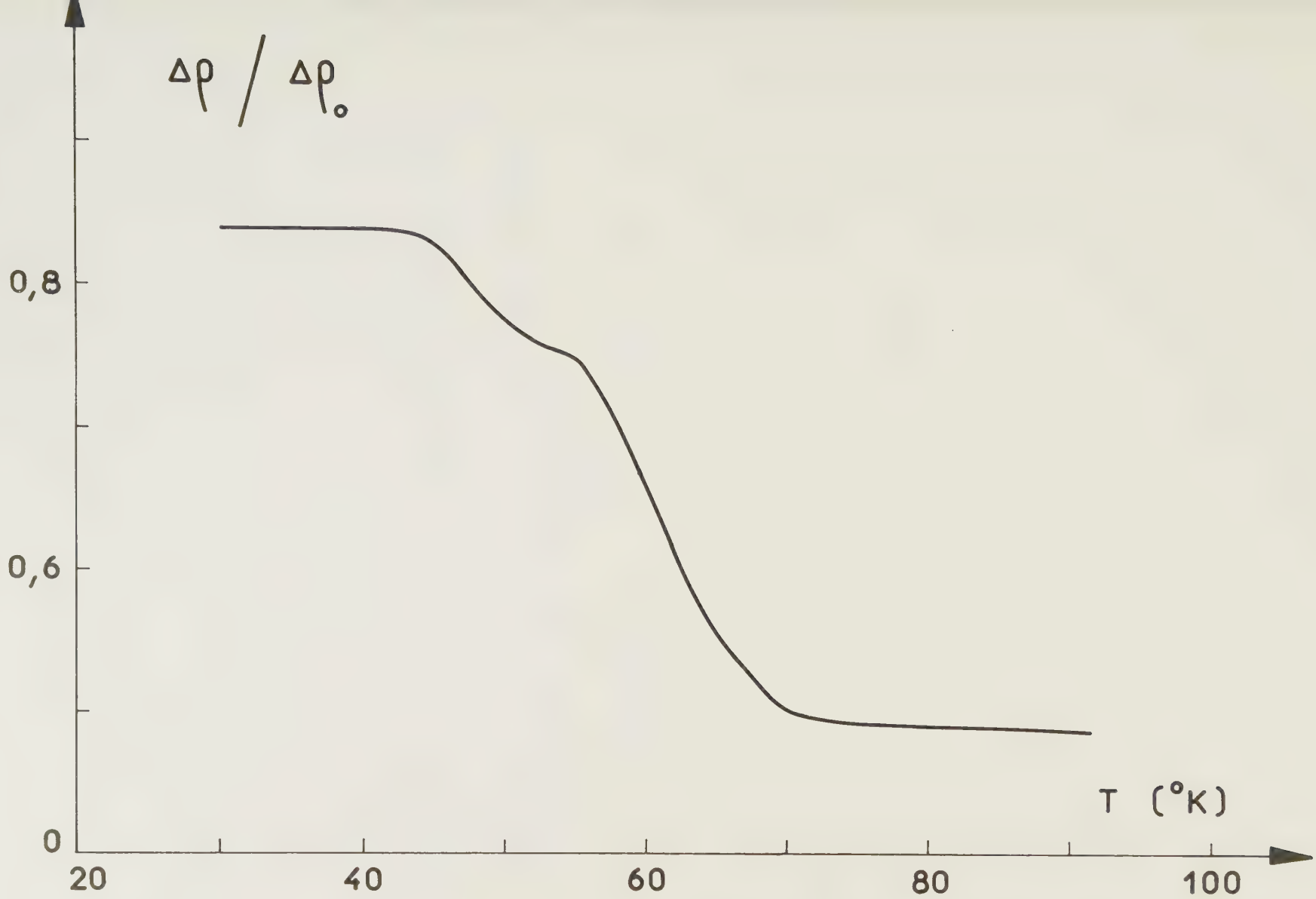


Fig. 7 - Restauration de la résistivité d'un échantillon de nickel pur au cours d'une élévation linéaire en température.

CHAPITRE III

RESULTATS EXPERIMENTAUX

Nous allons présenter les résultats obtenus sur du nickel pur et sur du nickel impur lors d'expériences couplées résistivité-énergie libérée. Ces deux techniques expérimentales ont été utilisées de façon simultanée.

III-1 Nickel pur

III-1-1 Résistivité

Le nickel étudié a un rapport de pureté $\frac{\rho_{300°K}}{\rho_{20°K}} = 240$.

L'analyse d'un échantillon de nickel est portée dans le tableau
Pour une irradiation de D = 5,78 10^{-2} A-mn c'est à dire un flux de D = 5,4 10^{18} e^-/cm^2, on a obtenu à 20°K un accroissement de résistivité $\Delta\rho_o$ = 11,10 10^{-2} $\mu\Omega$ - cm.

L'étude après irradiation s'effectue "in situ".
La figure 7 montre le revenu de la résistivité du nickel de 35°K à 90°K.
La dérivée est très sensible aux processus de revenu et permet de voir la sous-structure des différents stades. (fig. 8a)
Nous observons des sous-stades situés dans les domaines de température suivants :

35°K < T < 53°K

53°K < T < 72°K

Elément	Concentration en ppm at.	Elément	Concentration en ppm at.
Li	0,065	Ca	0,35
C	20	Sc	< 0,035
N	0,17	Ti	0,1
O	20	V	< 0,035
F	1	Cr	0,08
Na	0,1	Mn	< 0,035
Mg	0,3	Fe	3
Al	4	Co	< 0,75
Si	< 1	Cu	< 0,07
S	< 1	Zn	< 0,12
Cl	0,6	Ag	0,15
K	0,6		

TABLEAU I

Analyse par spectrométrie de masse à étincelles d'un échantillon de nickel Lights préparé par la méthode de la zone fondue.
Analyse faite par Melle M. BOISSIER

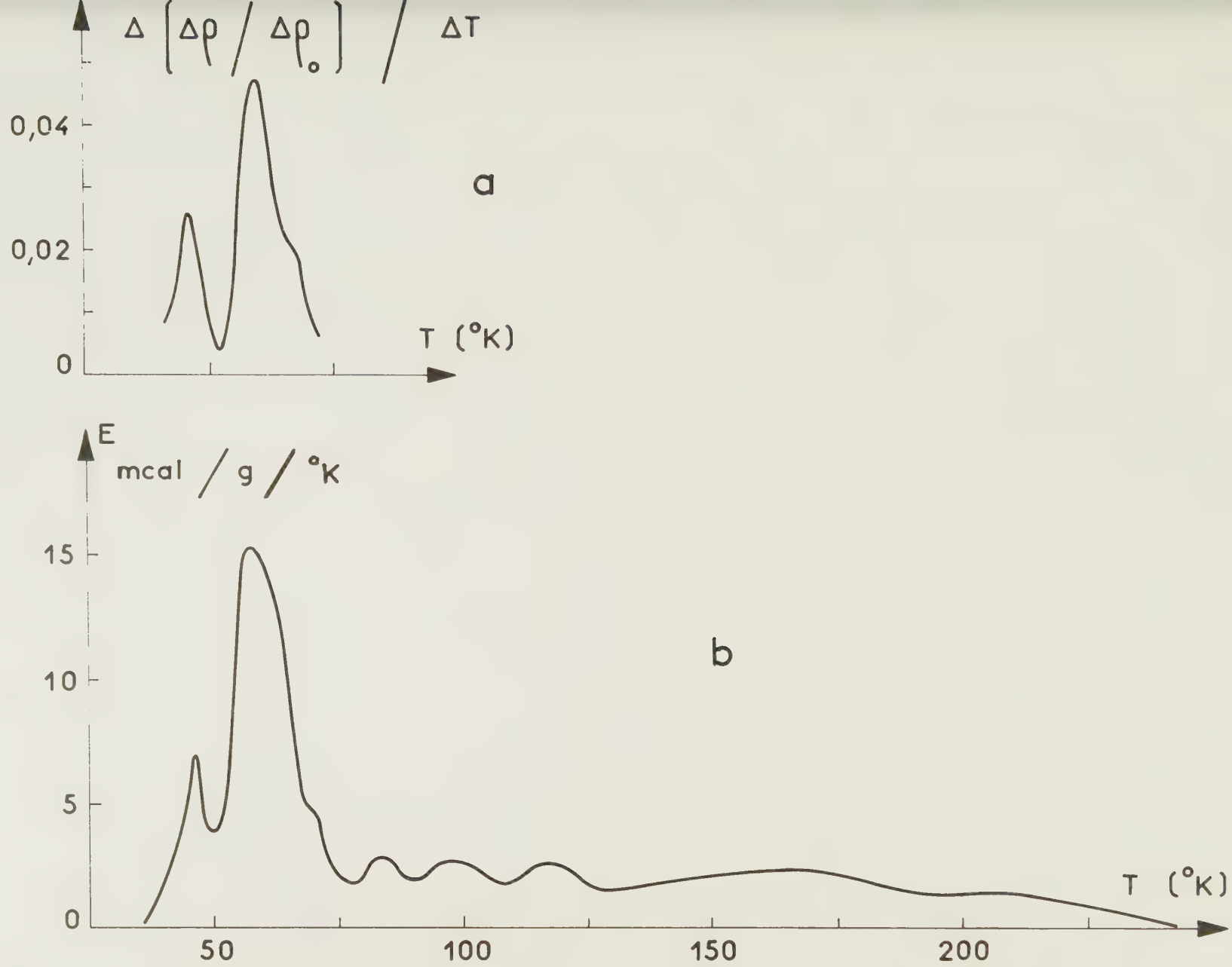


Fig. 8 - Restauration de la résistivité (a) et énergie libérée (b) dans un échantillon de nickel pur irradié par des électrons de 2 MeV.

Or J.L. ODDOU (Ref. 1) avait trouvé la subdivision suivante:

sous-stade I_B	21°K	< T < 33°K
sous-stade I_C	33°K	< T < 45,5°K
sous-stades I_D+I_E	45,5°K	< T < 71°K

Les sous-stades que nous observons sur la fig.(8a) sont donc les sous-stades I_C et I_D+I_E, ces deux derniers n'étant pas séparés. Le sous-stade I_E est seulement un épaulement sur le sous-stade I_D du coté des hautes températures.
Dans le tableau suivant sont rassemblés les pourcentages de restauration attribués à chaque sous-stade et ceux trouvés par ODDOU.

$D= 5,4.10^{18} e^-/cm^2$				résultats trouvés par ODDOU			
pourcentage %			position des maxima	pourcentage %			position des maxima
stade I 71	I_C	16	46°K	stade I 76	I_B	2	43°K
	I_D + I_E	53	60°K 67°K		I_C	15	58°K
					I_D + I_E	59	65°K

III-1-2 Energie libérée

La libération de l'énergie s'effectue en plusieurs stades et sous-stades (fig.8.b). Afin de les comparer à ceux trouvés en résistivité, nous ne nous intéressons qu'aux sous-stades I_C et $I_D + I_E$.

Dans le tableau suivant sont indiquées la libération d'énergie correspondant à chaque sous-stade, et la température de leurs maxima.

domaine	de température	énergie libérée	maximum
stade I	I_C 36°K < T < 50°K	50 mcal/g	46,5°K
	I_D, I_E 50°K < T < 75°K	224 mcal/g	57,5°K 69 °K

L'énergie totale libérée de 36°K à 250°K est de 509 mcal/g. L'écart de 1°K à 3°K que nous observons entre la position des maxima des pics de résistivité et de ceux d'énergie est dû au manque de précision avec laquelle on a la température. Nous prenons comme référence la température donnée par le thermocouple absolu qui sert de programme (sur échantillon T): il est impossible de mettre un thermocouple sur l'échantillon de résistivité car il apporterait une quantité considérable de calories qui perturberait les mesures calorimétriques. Afin de comparer les résultats obtenus en résistivité et en énergie, compte-tenu de la proportionnalité entre le nombre de défauts créés et la dose d'irradiation nous allons tous les référer à une dose unité (indice d) de 1 A-mn c'est à dire de $9,4.10^{19} e^-/cm^2$.

	Dose e^-/cm^2	$\Delta\rho_o^d$ $\mu\Omega$ cm/e^- cm^{-2}	$\frac{\Delta\rho_{ID+E}}{\Delta\rho_o}$	t° du maximum de I_D en résistivité	t° du maximum de I_D en énergie	$\frac{\Delta E}{\Delta\rho}_{ID+E}$ cal/g$\mu\Omega$cm
	$5,4.10^{18}$	1,92	0,5	60°K	57,5°K	3,9

III-2 Nickel impur

III-2-1 Nickel-Silicium (Réf. 15)

Nous avons utilisé trois concentrations : 140, 730, et 2900.10^{-4} at%. Les résultats sont groupés sur les figures (9 et 10) et dans le tableau II.
En comparant les résultats du nickel pur et ceux du nickel silicium notons que :

1) $\frac{\Delta\rho_o^d \text{ impur}}{\Delta\rho_o^d \text{ Ni pur}} > 1$

2) I_E disparait en présence de silicium même pour une concentration de 140.10^{-4} at%

3) Le pourcentage du revenu aux sous-stades I_{D+E} $(\frac{\Delta\rho_{I_{D+E}}}{\Delta\rho_0})$ est inférieur à celui trouvé dans le nickel pur, et a tendance à diminuer quand la concentration en silicium augmente.

4) Aux imprécisions en température près, le maximum du sous-stade I_D est toujours à la même température, aussi bien en résistivité qu'en énergie.

5) L'amplitude du sous-stade I_D en énergie diminue très nettement avec la concentration de silicium (fig. 10) alors que $\Delta\rho^d_{ID+E}$ reste constant, d'où une diminution très nette du rapport $\frac{\Delta E}{\Delta\rho}\Big]_{I_{D+E}}$ Ce dernier rapport est connu avec précision. Dans tous les résultats faisant intervenir la dose (indice d) il faut tenir compte du peu de précision avec laquelle elle est connue.

III-2 Nickel impur

III-2-1 Nickel-Silicium (Réf. 15)

Nous avons utilisé trois concentrations : 140, 730, et 2900.10^{-4} at%. Les résultats sont groupés sur les figures (9 et 10) et dans le tableau II.
En comparant les résultats du nickel pur et ceux du nickel silicium notons que :

1) $\frac{\Delta\rho_o^d \text{ impur}}{\Delta\rho_o^d \text{ Ni pur}} > 1$

2) I_E disparaît en présence de silicium même pour une concentration de 140.10^{-4} at%

3) Le pourcentage du revenu aux sous-stades I_{D+E} $(\frac{\Delta\rho_{I_{D+E}}}{\Delta\rho_0})$ est inférieur à celui trouvé dans le nickel pur, et a tendance à diminuer quand la concentration en silicium augmente.

4) Aux imprécisions en température près, le maximum du sous-stade I_D est toujours à la même température, aussi bie en résistivité qu'en énergie.

5) L'amplitude du sous-stade I_D en énergie diminue très nettement avec la concentration de silicium (fig. 10) alo que $\Delta\rho^d_{ID+E}$ reste constant, d'où une diminution très nette du rapport $\frac{\Delta E}{\Delta\rho}\Big|_{I_{D+E}}$ Ce dernier rapport est connu avec précision. Da tous les résultats faisant intervenir la dose (indice d) il faut tenir compte du peu de précision avec laquelle elle est connue.

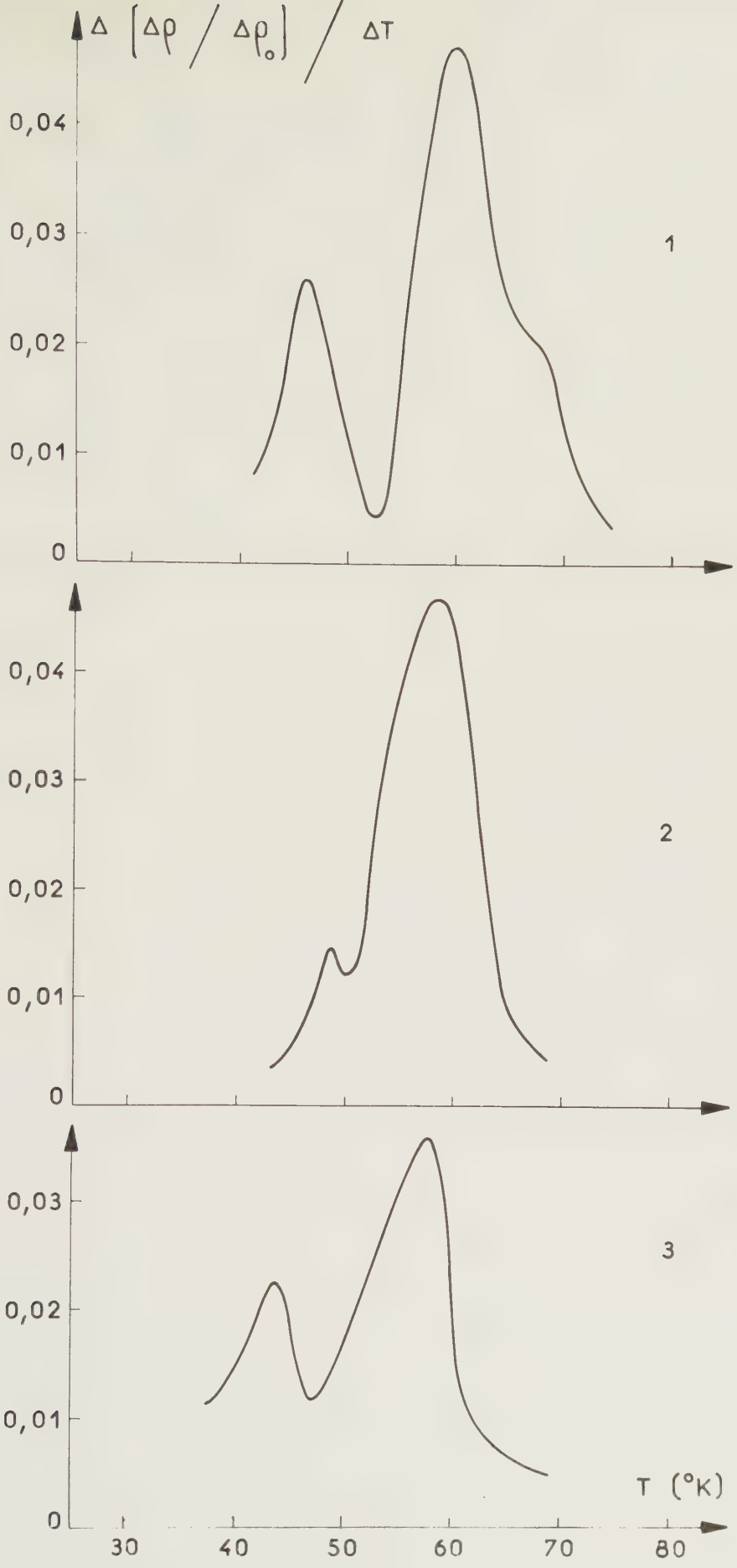


Fig. 9 - Restauration de la résistivité pour un échantillon

1. de nickel pur
2. de nickel contenant 140.10^{-4} at % de silicium
3. de nickel contenant 2900.10^{-4} at % de silicium

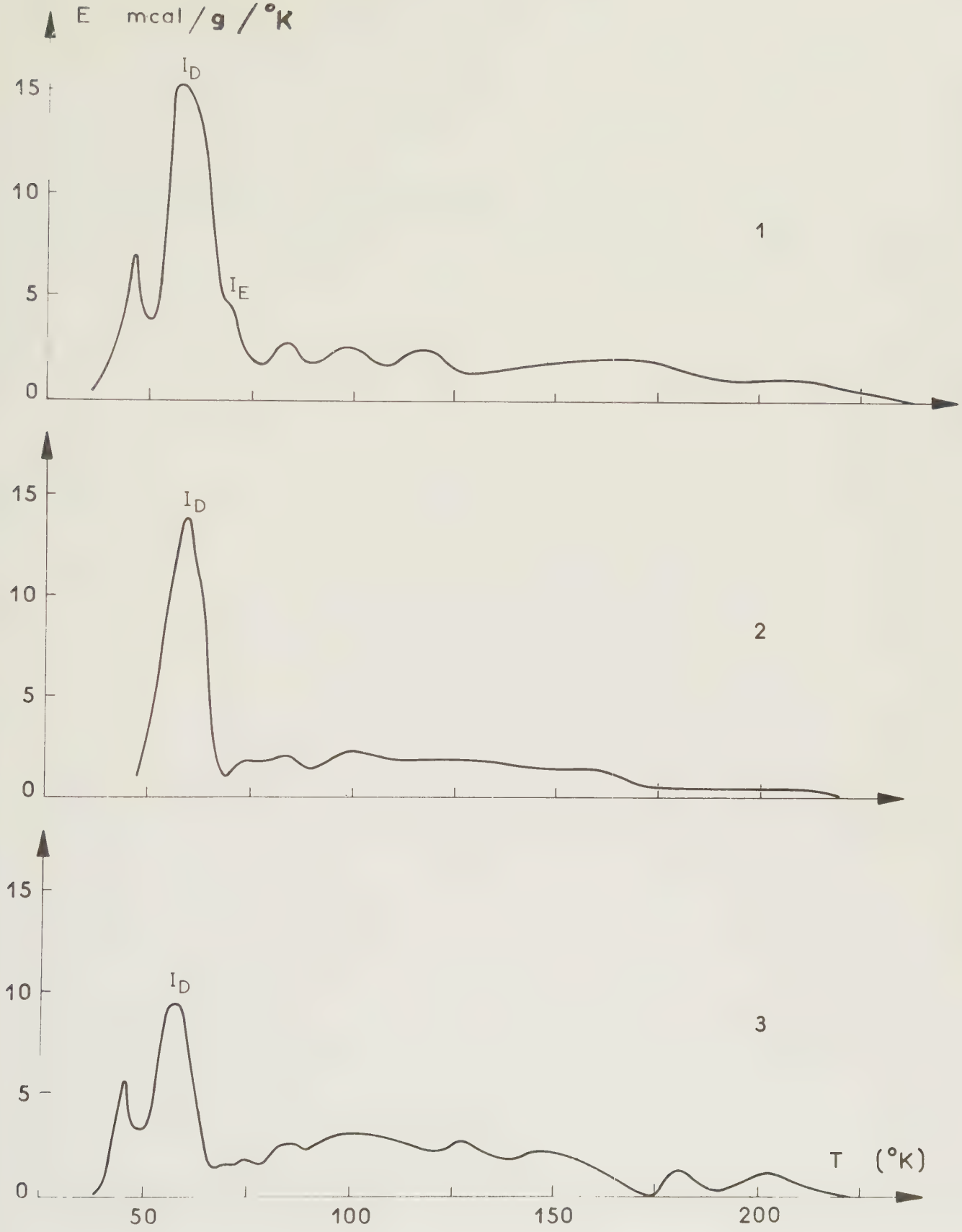


Fig. 10 - Energie libérée pour un échantillon

1. de nickel pur
2. de nickel contenant 140.10^{-4} at % de silicium
3. de nickel contenant 2900.10^{-4} at % de silicium

ncentration en silicium	140.10^{-4} at%	$730\ 10^{-4}$ at%	2900.10^{-4} at%
$\frac{\rho_{300°K}}{\rho_{20°K}}$	38	17	8
dose irradiation (e^-/cm^2)	$6,8.10^{18}$	$2,6.10^{18}$	$8,2.10^{18}$
$\Delta\rho_o$ ($\mu\Omega$-cm)	$13,78.10^{-2}$	$5,98.10^{-2}$	$25,18.10^{-2}$
$\Delta\rho_o^d$ (Ω-cm/e^-cm^{-2})	1,91	2,13	2,89
$\Delta\rho^d_{I_{D+E}}$ (Ω-cm/e^-cm^2)	1	1,3	1,1
osition des I_C xima en I_D sistivité de:	49 °K 58,5°K	48,2°K 60 °K	45,5°K 59 °K
osition des I_C xima en I_D ergie de:	59 °K	58 °K	46 °K 57,5°K
$\Delta E^d_{I_{D+E}}$ cal/g-e^-cm^{-2})	2,1	2,1	1,2
$\left.\frac{\Delta E}{\Delta\rho}\right\|_{I_{D+E}}$	2,2	1,6	1,1

TABLEAU II

Echantillons de nickel-silicium irradiés par des électrons de 2M

III-2-2 Nickel - Argent

Trois concentrations supposées être de l'ordre de 100.10^{-4} et 3000.10^{-4} at% en argent ont été étudiées. L'analyse selon deux méthodes différentes a donné les résultats suivants:

concentration supposée en argent	100	1000	3000
1) par spectrométrie de masse			
concentration réelle en argent	60 à 120	400	1200 500 à coeur
concentration en silicium	45 à 110	40	40
2) par absorption atomique			
concentration réelle en argent	15 à 25	120	270
concentration en silicium		<5	<5

Les résultats obtenus sont donnés dans le tableau III et sur les Fig. 11 et 12.

Par comparaison avec les résultats obtenus sur le nickel pur, notons que :

1) contrairement au silicium, $\frac{\Delta\rho_o^d \text{ impur}}{\Delta\rho_o^d \text{ pur}} < 1$

2) le sous-stade I_E disparaît avec l'argent

3) le maximum du sous-stade I_D est toujours à la même température

4) à 150°K tous les défauts ont été annihilés pour une concentration en argent de 1000.10^{-4} at%

5) l'amplitude du sous-stade reste à peu près inchangée en énergie, tandis que pour l'argent c'est $\Delta\rho_{I_{D+E}}^d$ qui diminue avec la concentration en argent, d'où une augmentation du rapport $\left.\frac{\Delta E}{\Delta\rho}\right]_{I_{D+E}}$ avec la concentration.

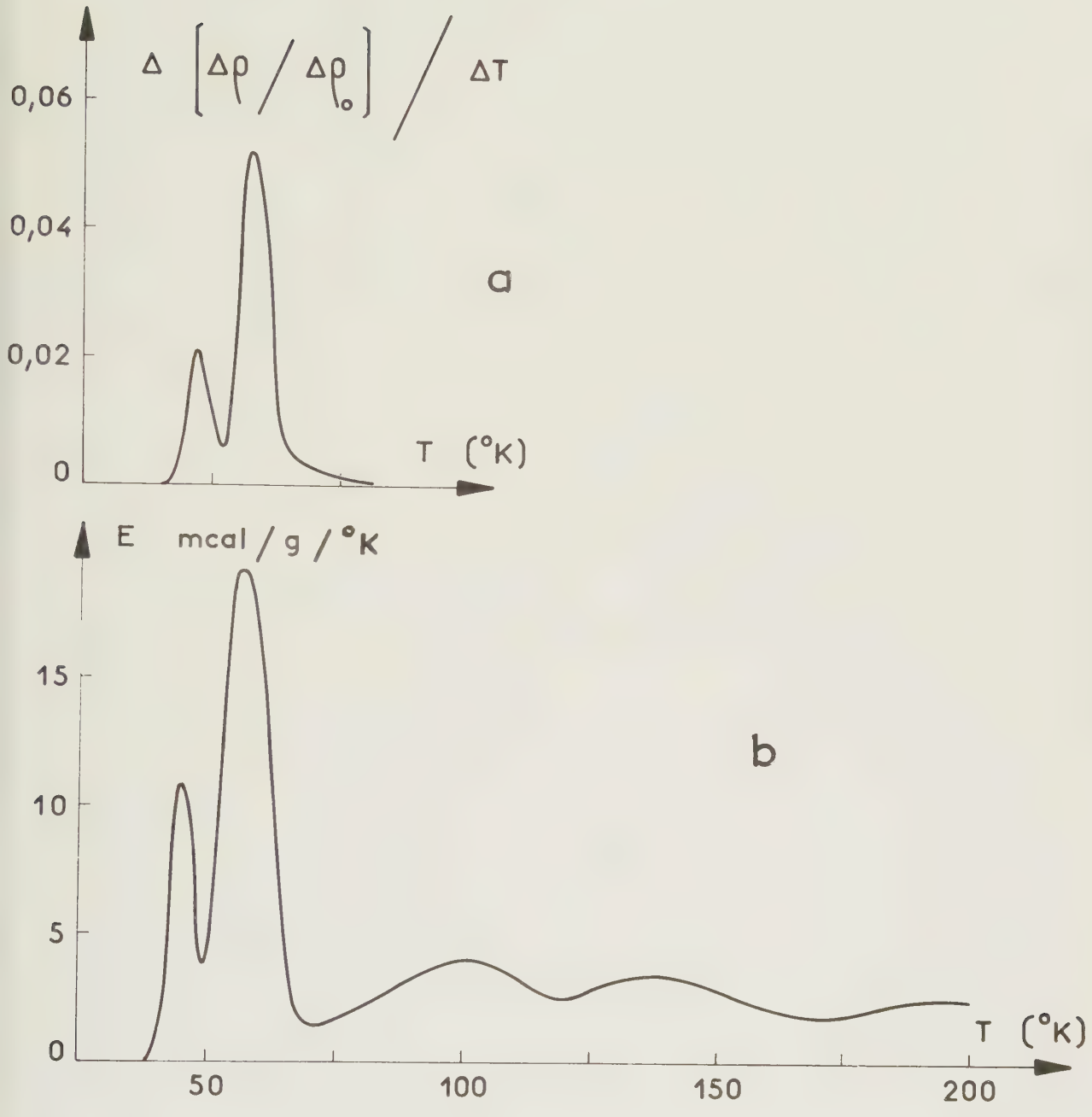


Fig. 11 - Restauration de la résistivité (a) et énergie libérée (b) dans un échantillon de nickel contenant 100.10^{-4} at % d'argent.

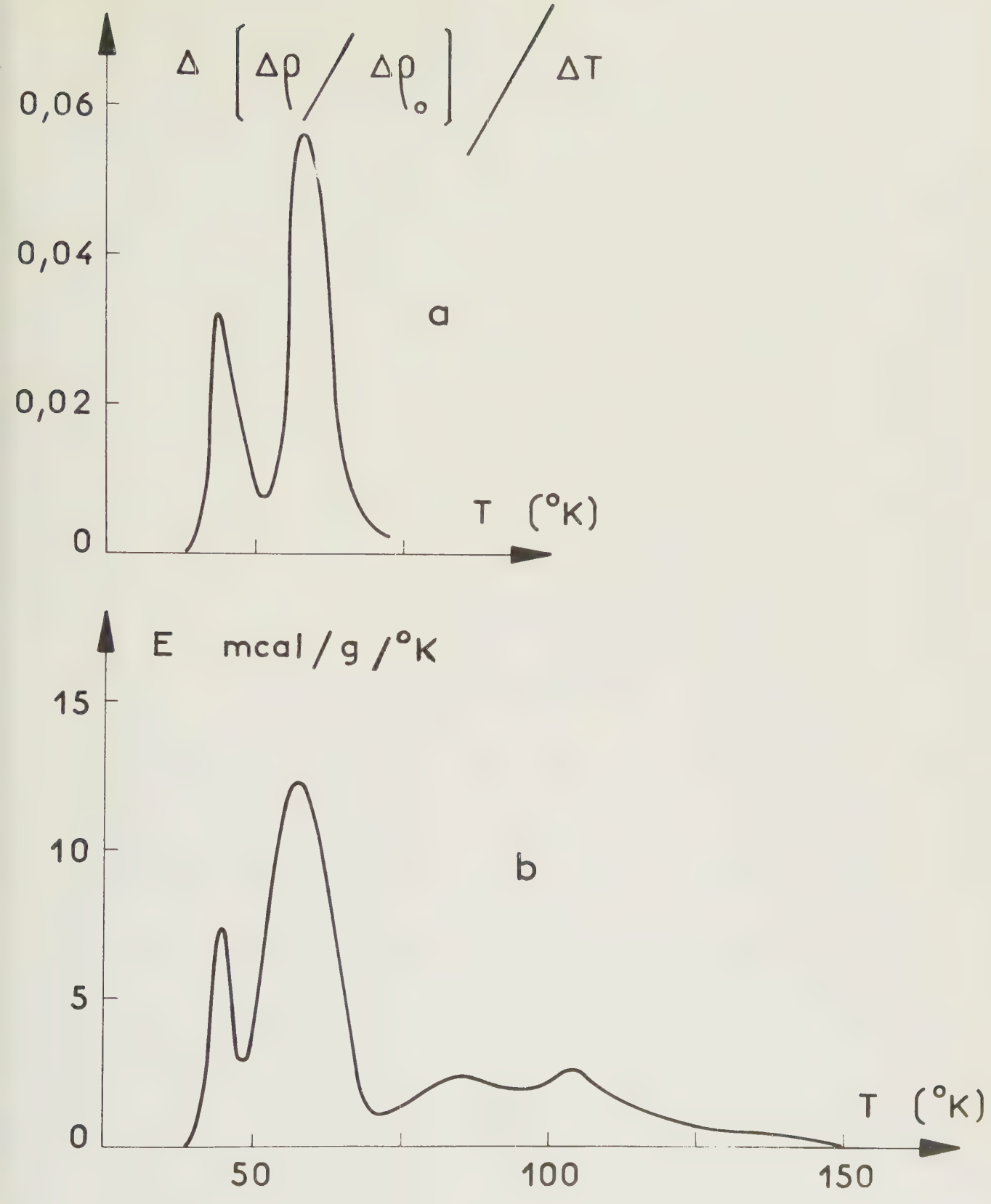


Fig. 12 - Restauration de la résistivité (a) et énergie libérée (b) dans un échantillon de nickel contenant 1000.10^{-4} at % d'argent

centration en ent (supposée)	100.10^{-4} at%	1000.10^{-4} at%	1000.10^{-4} at%
$\frac{\rho_{300°K}}{\rho_{20°K}}$	20	28	28
dose rradiation (e^-/cm^2)	$4,7.10^{18}$	$4,7.10^{18}$	$2,8.10^{18}$
$\Delta\rho_o$ $\mu\Omega$-cm)	$6,63.10^{-2}$	$2,46.10^{-2}$	$1,29.10^{-2}$
$\Delta\rho_o^d$ -cm/e^-cm^{-2})	1,3	0,5	0,4
$\rho^d_{I_{D+E}}$ -cm/e^-cm^{-2})	0,46	0,24	0,26
ition des maxima I_C	47°K	44°K	
résistivité de I_D	57,5°K	58,5°K	60°K
ition des maxima I_C	45°K	44,5°K	44°K
énergie de I_D	56,5°K	58°K	57°K
$\Delta E^d_{I_{D+E}}$ al/g-e^-cm^{-2}	4,3	3,2	3,3
$\left[\frac{\Delta E}{\Delta\rho}\right]_{I_{D+E}}$	9,2	13,4	12,5

TABLEAU III

Echantillons de nickel-argent irradiés par des électrons de 2Me

III-2-3 Nickel-Béryllium

Les expériences ont été réalisées également sur des échantillons de nickel dopé avec trois concentrations différentes de béryllium supposées être de 100.10^{-4}, 1000.10^{-4} et 3000.10^{-4} at%. Les résultats obtenus par analyse ont donné:

concentration supposée en béryllium	100.10^{-4}	1000.10^{-4}	3000.10^{-4}
concentration trouvée en béryllium	70.10^{-4}	990.10^{-4}	2400.10^{-4}
concentration trouvée en silicium	20.10^{-4}	40.10^{-4}	20.10^{-4}

Les résultats trouvés sur des échantillons de 70.10^{-4} at% sont donnés dans le tableau IV et sur la Fig.13.

Plusieurs expériences ont été réalisées sur des échantillons supposés contenir 1000.10^{-4} at% mais les résultats ne sont pas reproductibles. Les résultats obtenus sur un échantillon supposé contenir 3000.10^{-4} at% de béryllium sont aberrants et ne sont pas cohérents avec ceux trouvés sur le nickel pur et le nickel-béryllium (70.10^{-4} at%).

En comparant les résultats obtenus sur l'échantillon renfermant 70.10^{-4} at% de béryllium avec ceux sur le nickel pur, on pourrait remarquer que :

1) $\dfrac{\Delta\rho_o^d \text{ impur}}{\Delta\rho_o^d \text{ Ni pur}} \simeq 1$

2) le sous-stade I_E n'existe pas

3) $\Delta E^d_{I_{D+E}}$ et $\Delta\rho_{I_{D+E}}^d$ diminuent légèrement dans le cas du nickel-béryllium

4) le rapport $\left.\dfrac{\Delta E}{\Delta\rho}\right]_{I_{D+E}}$ est à peu près le même que celui trouvé pour le nickel pur

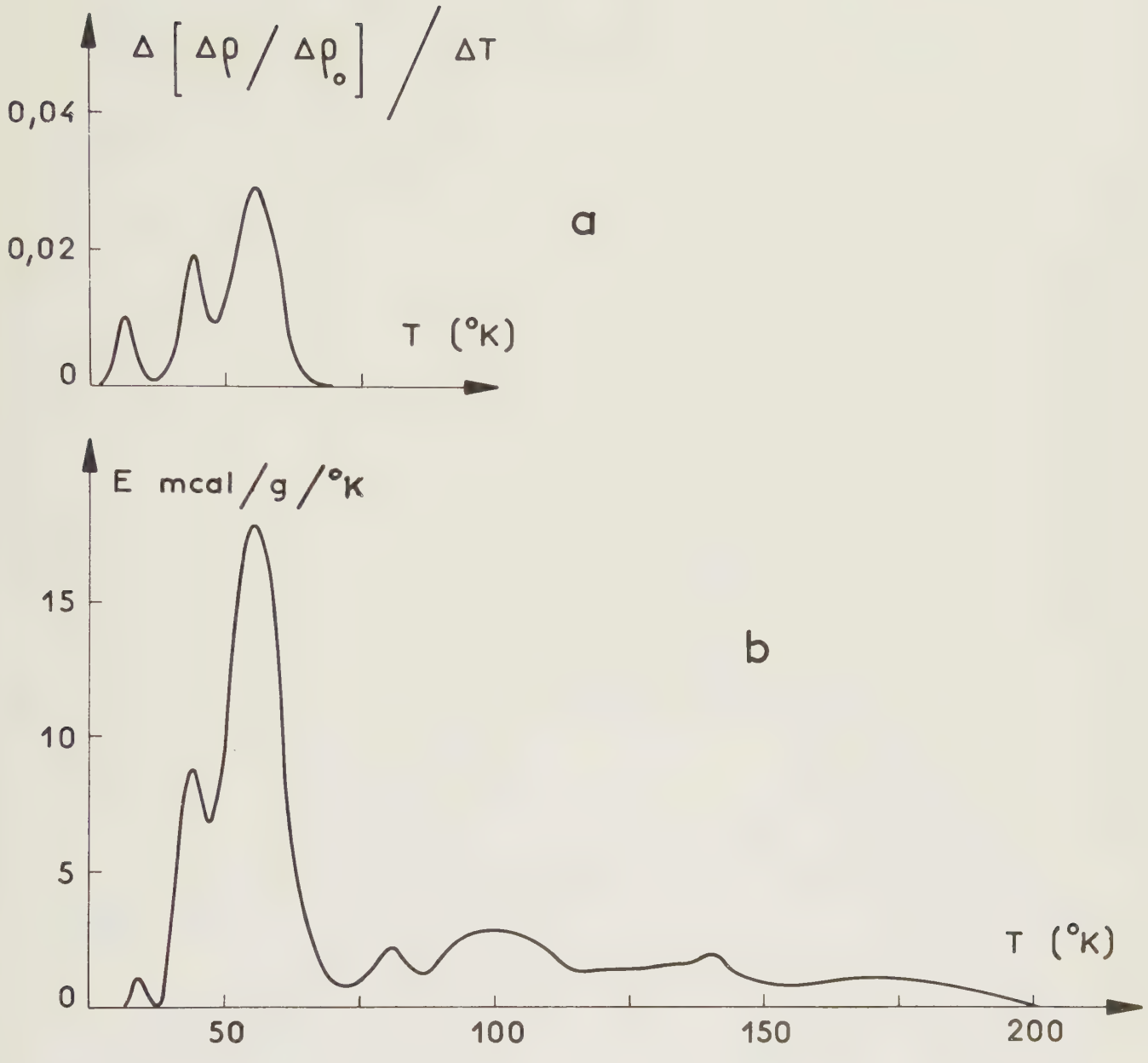


Fig. 13 -

Restauration de la résistivité (a) et énergie libérée (b) dans un échantillon de nickel contenant 70.10^{-4} at % de béryllium.

concentration en béryllium	70.10^{-4} at%	70.10^{-4} at%
$\frac{\rho_{300°K}}{\rho_{20°K}}$	15	14,4
dose d'irradiation (e^-/cm^2)	8.10^{18}	$3,7.10^{18}$
$\Delta\rho_o$ ($\mu\Omega$-cm)	$16.63, 10^{-2}$	$7,47.10^{-2}$
$\Delta\rho_o^d$ ($\mu\Omega$-cm/e^-cm^2)	1,93	1,90
$\Delta\rho^d_{I_{D+E}}$ ($\mu\Omega$-cm/e^-cm^2)	0,56	1
position des maxima en résistivité de I_B	31,5°K	
I_C	44°K	
I_D	55,5°K	56°K
positions des maxima en énergie de I_B	34°K	
I_C	44°K	44°K
I_D	55,5°K	55°K
$\Delta E^d_{I_{D+E}}$ (mcal/g-e^-cm^2)	2,55	4
$\left[\frac{\Delta E}{\Delta\rho}\right]_{I_{D+E}}$	4,5	4,2

TABLEAU IV

Echantillons de nickel-béryllium irradiés par des électrons de 2 MeV

Il est dommage que pour toutes ces expériences les résultats d'analyses des échantillons aient été fournis plusieurs mois après la réalisation des expériences, car la présence importante de silicium dans certains échantillons ne nous permet pas d'interpréter les résultats obtenus.

CHAPITRE IV

DISCUSSION DES RESULTATS

IV-1 Nickel pur

L'augmentation de résistivité observée après irradiation électronique à 20°K est proportionnelle au pourcentage C de paires de Frenkel créées (Réf.16)

$$\Delta\rho_o = C \cdot \Delta\rho_F$$

$\Delta\rho_F$ est l'accroissement de résistivité correspondant à une concentration de 1% de paire de Frenkel lacune-interstitiel.

En couplant aux mesures de résistivité des mesures d'énergie libérée, on peut déterminer le nombre n de défauts créés lors d'une irradiation. En effet l'énergie libérée est aussi proportionnelle au nombre n.

$$\Delta E = n \cdot \Delta E_F$$

ΔE_F est l'énergie libérée lors de l'annihilation d'une paire de Frenkel. R.A. JOHNSON (Réf.11) a calculé l'énergie de formation dans le nickel d'une lacune = 1,49 eV et d'un interstitiel: 4,08 eV ; Connaissant le rapport $\frac{\Delta E}{\Delta\rho_o}$ = 4,6 cal/g-µ-Ω-cm et en prenant la valeur de 5,57 eV pour la libération d'énergie lors de la recombinaison d'une paire lacune-interstitiel, on peut calculer la résistivité de 1% de paire de Frenkel - Nous trouvons

$$\Delta\rho_F = 4,7\mu\text{-}\Omega\text{-cm}$$

P.G. LUCASSON et R.W. WALKER (Ref.17) ont trouvé expérimentalement la valeur 3,2μ-Ω-cm par at%. Ces auteurs ont déterminé la valeur de $\Delta\rho_F$ pour d'autres métaux, notamment le cuivre = 1,3μ-Ω-cm par at% alors que les calculs théoriques prévoyaient des valeurs allant de 1,0μ-Ω-cm à 12,0 par at%.

Pour une expérience sur le nickel pur, l'accroissement initial de résistivité obtenu étant de $11,10.10^{-2}$μ-Ω-cm, nous trouvons un pourcentage de paires de Frenkel créées:

$$C = 0,02 \text{ at\%}$$

IV-2 Nickel allié

Nous allons rappeler brièvement les différents résultats obtenus.

Par rapport au nickel pur l'accroissement initial $\Delta\rho_o^d$ augmente fortement avec le silicium, reste inchangé avec le béryllium et diminue avec l'argent.

Avec le silicium et le béryllium, l'énergie totale libérée diminue.

Le rapport $\frac{\Delta E}{\Delta\rho}\Big|_{I_{D+E}}$ diminue en présence de silicium, augmente très lègèrement en présence de béryllium et de manière beaucoup plus considérable en présence de l'argent.

Enfin le pourcentage de revenu des sous-stades I_{D+E} diminue en présence de n'importe quelle impureté tandis que la position du pic I_D est inchangée en température et dans tous les cas, nous notons la disparition du sous-stade I_E.

Une interprétation simple ne sera pas possible car chacune des impuretés agit différemment; mais n'oublions pas que si les expériences sur le nickel-silicium ont été faites sur un métal de base de très grande pureté, il n'en est pas de même pour celles sur le nickel-argent et sur le nickel-béryllium ; par suite elles devront être interprétées avec prudence, à cause de la présence non négligeable de silicium. Nous devons donc chercher divers mécanismes d'intervention des impuretés aussi

bien pendant irradiation (mécanismes 1 et 2) que durant le recuit (mécanismes 3 et 4) et en analyser les conséquences sur les grandeurs mesurées.

IV-2-1 Premier mécanisme

Durant l'irradiation un plus grand nombre de défauts ponctuels est créé dans un métal impur que dans un métal pur, par différents processus analysés au chapitre I. L'efficacité de l'impureté doit être d'autant plus grande qu'elle perturbe plus le réseau : par exemple si elle a un rayon atomique beaucoup plus grand que celui du nickel ; c'est le cas pour l'argent. Comme l'augmentation initiale de résistivité et l'énergie totale libérée sont proportionnelles au nombre de défauts créés, nous devrions avoir simultanément une augmentation de $\Delta\rho_o^d$ et de ΔE^d. Or aucune impureté ne provoque à la fois une augmentation des deux grandeurs physiques. L'accroissement important de $\Delta\rho_o^d$ dans le silicium confirmerait cette hypothèse mais il faudrait alors admettre que l'énergie de recombinaison d'une paire de Frenkel est diminuée par la proximité d'une impureté de silicium.

IV-2-2 Deuxième mécanisme

Les impuretés (silicium, béryllium et argent) sont placées en substitution dans la matrice de nickel. Lorsqu'on irradie, en restant à 20°K, ces impuretés restent-elles en substitution ou bien sont-elles déplacées pour se mettre en interstitiel?

Un électron de masse m et d'énergie E transmet à un atome de masse M une énergie maximum :

$$T_m = 2E\,(E+2mc^2)/Mc^2$$

Cette énergie maximum correspond à un choc de front : si l'atome est éjecté suivant un angle θ par rapport à la direction incidente des électrons, il reçoit alors une énergie donnée par

$$T_\theta = T_m \cos^2\theta$$

Lorsque cette énergie est supérieure à une valeur E_d appelée énergie seuil dans la direction d'éjection, l'atome est déplacé

Les énergies T_m transmises par un électron d'énergie E = 2 MeV à un atome sont :

- pour le nickel Tm_{Ni} = 220 eV
- pour le silicium Tm_{Si} = 460 eV
- pour le béryllium Tm_{Be} = 1435 eV
- pour l'argent Tm_{Ag} = 120 eV

L'énergie seuil E_d du métal polycristallin trouvée par P.G. LUCASSON (Ref.17) est de 24 eV. Si un atome de silicium ou de béryllium est choqué par un électron de 2 MeV, sa probabilité d'éjection est certainement beaucoup plus grande que celle d'un atome de nickel. D'autre part, compte-tenu de ses petites dimensions un atome de béryllium peut se mettre en position interstitielle et y sera plus stable qu'un atome de nickel. Il est donc possible, particulièrement aux atomes de béryllium de se mettre en interstitiel pendant l'irradiation.

Si le processus a lieu Si le processus n'a pas lieu

Si ce processus se produit, comme l'énergie de formation lacune-interstitiel de béryllium serait sans doute inférieure à l'énergie de formation lacune-interstitiel de nickel, l'énergie libérée lors de la recombinaison d'un interstitiel de béryllium dans une lacune serait plus faible que si l'on avait la recombinaison d'un interstitiel de nickel dans une lacune. On ignore à quel moment l'interstitiel de béryllium s'annihile. Il pourrait donc y avoir une modification dans les stades et un déplacement en

température de leurs pics. L'augmentation de résistivité est plus faible si c'est l'atome d'impureté qui est éjecté en position interstitielle que si une paire de Frenkel est créée au voisinage de l'impureté, donc $\Delta\rho_o^d$ devrait diminuer.

Le béryllium est la seule impureté pour laquelle $\Delta\rho_o^d$ et ΔE^d diminuent légèrement ; aussi ce mécanisme pourrait probablement avoir lieu en présence de béryllium mais pas pour les autres impuretés.

IV-2-3 Troisième mécanisme

Les impuretés agissent sur les défauts, soit au moment de leur formation pendant l'irradiation, ce que nous avons vu dans les paragraphes précédents, soit ultérieurement, quand leur migration devient thermiquement possible.

Les interstitiels de nickel, au cours de leur migration libre dans le réseau, aux sous-stades I_D et I_E sont captés par les impuretés avant de pouvoir se recombiner avec les lacunes (Ref.23 et 24). Ils ne sont remis en mouvement qu'à une température plus élevée réglée par l'énergie de liaison interstitiel-impureté. Donc on doit observer une diminution du pourcentage des sous-stades I_D et I_E. Dans les différentes expériences réalisées, nous remarquons bien une nette décroissance du pourcentage des défauts annihilés à la fin du stade I, c'est à dire à 75°K. Par exemple, dans le cas du silicium, nous avons :

concentration en silicium	0.10^{-4} at %	140.10^{-4} at %	2900.10^{-4} at %
$\frac{\Delta\rho I}{\Delta\rho_o}$ %	71	69	61

La décroissance est beaucoup plus rapide dans le cas du nickel dopé au béryllium. Avec seulement 70.10^{-4} at% de béryllium, le rapport $\frac{\Delta\rho_I}{\Delta\rho_o}$ passe de 71% à 58%. Le béryllium est très piègeant.

L'addition d'impuretés en retenant les interstitiels doit agir davantage sur les paires éloignées que sur les paires proches. La courbe du revenu des défauts est alors peu modifiée pour les valeurs inférieures des énergies d'activation, mais le poids des valeurs supérieures devient beaucoup plus faible; c'est à dire que le flanc côté haute température du pic I_D se déplace vers la gauche tandis que le flanc gauche reste presque inchangé. Nous remarquons bien ceci dans le cas du nickel-silicium (fig.9 et 10)

Nous devrions aussi avoir la même décroissance dans le pourcentage de l'énergie libérée à la fin du stade I, ce qui est le cas pour le nickel-silicium :

concentration en silicium	0.10^{-4} at %	140.10^{-4} at %	2900.10^{-4} at %
$\frac{\Delta E_I}{\Delta E_{total}}$ %	45	43	26

La décroissance est très faible dans le béryllium.
Le processus de piègeage des interstitiels par les impuretés explique bien la diminution du pourcentage des sous-stades I_{D+E} et la disparition de I_E aussi bien en résistivité qu'en énergie Il semble plus important pour le béryllium que pour le silicium ce qui tend à montrer l'influence du rayon atomique de l'impureté sur l'énergie de liaison (Ref.4 et 25) interstitiel-impureté comme l'ont déjà observé d'autres expérimentateurs.

IV-2-4 Quatrième mécanisme

Un autre processus peut aussi se produire. Dès que l'on réchauffe l'échantillon, l'interstitiel de nickel, au cours de sa migration, lors des sous-stades I_D et I_E, rencontre une impureté. Il peut être piégé par cette impureté, ce que nous venons de voir, mais il peut aussi prendre sa place et alors l'atome éjecté d'impureté se place en interstitiel

Si ce processus se produit, il est accompagné d'une diminution de résistivité, ce qui n'était pas le cas du mécanisme précédent et la disparition de l'impureté en interstitiel devrait s'accompagner d'un revenu de la résistivité, le tout conduisant à une augmentation de la largeur des sous-stades I_D+I_E et même à l'apparition d'un stade supplémentaire, ce qui n'est pas le cas.

Ce mécanisme pourrait être mis en évidence par des expériences de traînage magnétique où des bandes de traînage supplémentaires devraient apparaître lors de la guérison de la bande associée à I_E en présence d'impureté. Dans le fer, P. VIGIER (Ref. 25) avait proposé ce mécanisme pour expliquer l'action de l'impureté nickel ; les expériences dans le nickel sont en cours.

CONCLUSION

L'étude que nous avons présentée sur le nickel pur et le nickel allié, irradiés par des électrons, tout en confirmant la dépendance de l'accroissement initial $\Delta\rho_o^d$ avec l'impureté mis en évidence par J.L. ODDOU, nous a permis de donner avec précision la valeur de $\left(\frac{\Delta E}{\Delta\rho}\right)_{I_{D+E}} = 3,9$ cal/g·µ-cm dans le nickel pur.

En nous appuyant sur des calculs théoriques de l'énergie de formation ΔE_F d'une paire de Frenkel, nous avons pu donner la valeur de $\Delta\rho_F = 4,7$ µ-Ω-cm par at%

Ces expériences couplées d'énergie et de résistivité ont mis en évidence la grande sensibilité du rapport $\left(\frac{\Delta E}{\Delta\rho}\right)_{I_{D+E}}$ avec la présence et la nature de l'impureté. Ce rapport fortement décroissant en présence de silicium, a peu près inchangé dans le nickel-béryllium, augmente fortement avec l'impureté argent.

Les résultats dans le nickel pur et dans le nickel silicium sont sûrs; par contre le manque de pureté du nickel de base dans les alliages au béryllium ou à l'argent nous gène pour une interprétation possible des résultats obtenus. Plusieurs

mécanismes d'intervention des impuretés sont néanmoins probables:

- toutes les impuretés piègent les interstitiels de nickel et retardent leur annihilation dans les lacunes.

- lors de la création des défauts, l'impureté béryllium est préférentiellement éjectée en position interstitielle.

Il semble que l'énergie de recombinaison d'une paire de Frenkel est fortement diminuée par la proximité d'une impureté silicium.

Il serait intéressant de faire des expériences de traînage magnétique dans le nickel allié afin de mettre en évidence l'hypothèse de l'interstitiel de nickel prenant la place d'un atome d'impureté.

Enfin des expériences couplées énergie-résistivité, après irradiation à 4°K permettront l'étude de tous les sous-stades de guérison des paires proches, entre autres I_B et I_C, et en particulier de tous les rapports $\frac{\Delta E}{\Delta \rho}$ correspondant. Pour ceci pourra être utilisé le dispositif calorimétrique récemment mis au point par R. LAGNIER (Ref. 26) et pouvant fonctionner dans le domaine de température 4°K - 300°K.

REFERENCES

[1] J.L. ODDOU
Thèse GRENOBLE 1967

[2] P. PERETTO
Thèse GRENOBLE 1968

[3] G.de KEATING-HART
Thèse GRENOBLE 1968

[4] C. MINIER-CASSAYRE
Thèse GRENOBLE 1965

[5] R. COPE
Thèse GRENOBLE 1968

[6] I.A. CAMPBELL, A. FERT, A.R. POMEROY
Phil. Mag., 15, (1967) p.977

[7] J. DURAND, F. GAUTIER
J. Phys. Chem. Solids, 31, (1970) p.2773

[8] J. FRIEDEL
Le journal de Physique, 24, (juillet 1963) p.417

[9] J. FRIEDEL
Nuoro Cimento, 7, (1958) p.287

[10] J.B. GIBSON, A.N. GOLAND, M. MILGRAND, G.H. VINEYARD
Phys. Rev., 120, (1960) p. 1229

[11] R.A. JOHNSON
Phys. Rev., 145, (1966) p.423

[12] K. KAMADA, Y. KAZUMATA, S. SUDA
Phys. Stat. Sol., 7, (1964) p.231

[13] T.H. BLEWITT, R.R. COLTMAN, C.E. KLABUNDE
J. Phys. Soc. Jap., 18, (1963) p.288

[14] E. BONJOUR, J. PIERRE, S. AGAGLIATE, P. BERTRAND, J. FAIVRE, R. LAGNIER
Rapport CEA-R-3181 (1967 - CEN-G)

[15] J.M. COTIGNOLA, C. MINIER, A. PAILLERY, E. BONJOUR
Phys. Stat. Sol., 42, (1970) p.167

[16] H. WENZL
"Vacancies and Interstitials in metals", North-Holland, Amsterdam (1969) p.363

[17] P.G. LUCASSON, R.M. WALKER
Phys. Rev., 127, (1962) p. 485

[18] R. LOSEHAND, F. RAU, H. WENZL
Radiations effects, 2, (1969) p.69

[19] T.G. NILAN, A. GRANATO
Phys.Rev., 137, 4 A (février 1965) p.1233

[20] K.ISEBECK, F. RAU, W. SCHILLING, K. SONNENBERG, P. TISHER, H. WENZL
Phys. Stat. Sol., 17,(1966) p.259

[21] K. FEESE, D. HOFFMANN, H. WOLLENBERGER
Crystal Lattice Defects, 1, (1970) p.245

[22] E. BONJOUR
"Colloque International de thermochimie-CNRS-MARSEILLE" , Note SPCBT n°226 (février 1971)

[23] H.M. SIMPSON, A. SOSIN
Radiations Effects, 3, (1970) p.1

[24] A.C. DAMASK, G.J. DIENES
Phys. Rev., 125,(1962) p.444

[25] P. VIGIER
Thèse GRENOBLE 1966

[26] R. LAGNIER
Thèse GRENOBLE 1971